

# Strukturuntersuchungen an Oxidkristalloberflächen mittels der streifenden Streuung schneller Atome

## Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium  
(Dr. rer. nat.)  
im Fach Physik

eingereicht an der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Humboldt-Universität zu Berlin

von

M. Sc. Eric Meyer

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:  
Prof. Dr. J.-H. Olbertz

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
Prof. Dr. E. Kulke

Gutachter/in: 1. Prof. Dr. H. Winter  
2. Prof. Dr. S. F. Fischer  
3. Assoc. Prof. Dr. D. Farias Tejerina

Tag der mündlichen Prüfung: 28.10.2015





# Abstract

In this thesis mainly the structure of oxide crystal surfaces is investigated. The surface structure has a crucial influence on the chemical reactivity as well as the physical properties. Therefore the knowledge of the surface morphology is of essential interest for basic research and the development of applications.

The morphological characterization of the crystal surfaces had been done by means of the scattering of fast atoms and molecules with energies in the keV-range under grazing incidence. The projectiles are scattered from a single-crystal surface under an angle of incidence of about  $\Phi_{in} \leq 2^\circ$ . Scattering takes place along low-indexed surface directions in the regime of axial channeling. At sufficiently low energies diffraction effects can be observed that can be explained in terms of the interference of matter waves. By analyzing the scattering distribution of the projectiles one gains insight into the interaction potential and therefore into the surface structure with a sensitivity to a tenth of an Å.

By investigating the (100) and the (001) surfaces, all lattice parameters of the  $\beta$ - $Ga_2O_3$  system could be determined. The measurements on the (100) surface showed a clear preference for one of the two possible surface-terminations discussed in the literature. Furthermore, it was possible to develop an alternative structural model for this termination by adapting simulations to the measurements.

Based on the recent finding of the longitudinal coherence in the scattering of fast atoms under grazing incidence from a  $\alpha$ - $Al_2O_3(11\bar{2}0)$  surface in this group, the measurements on this surface could be expanded. Moreover, an effective analysis procedure was developed. The existence of the longitudinal coherence could also be observed during measurements on a  $\alpha$ - $Al_2O_3(0001)$  surface. For each surface all lattice parameters were determined with high precision. Applying a simple model the intensities of the diffraction spots were calculated.

For the first time in this team it was possible to deviate an interaction potential for the scattering of  $H_2$  molecules from a  $KCl(001)$  surface. With applied simulations the differences between scattering of atoms and molecules regarding the modulation of the diffraction intensities with the perpendicular de-Broglie wavelength was explained.

---

## Kurzzusammenfassung

Diese Dissertation beschäftigt sich hauptsächlich mit der Bestimmung der Oberflächenstruktur von Oxidkristallen. Die Struktur der Oberfläche beeinflusst die chemische Reaktivität und die physikalischen Eigenschaften entscheidend. Die Bestimmung der Struktur ist demnach gleichermaßen für die Grundlagenforschung, wie auch für die Entwicklung von Anwendungen essentiell.

Die strukturelle Charakterisierung der Oberflächen fand mittels der streifenden Streuung schneller Atome und Moleküle statt. Bei dieser Methode werden Atome oder Moleküle mit Energien im keV-Bereich unter streifendem Einfall (Einfallswinkel  $\Phi_{in} \leq 2^\circ$ ) an einer Einkristalloberfläche gestreut. Die Projektile werden unter axialer Gitterführung entlang niedrig-indizierter Kristallrichtungen gestreut und können mittels eines ortsauflösenden Detektors nachgewiesen werden. Bei hinreichend kleinen Energien, können Beugungserscheinungen beobachtet werden, die auf die Interferenz von Materiewellen zurückzuführen sind. Durch eine Analyse der Streuverteilung der Projektile, können Rückschlüsse auf das Wechselwirkungspotential und somit letztlich auf die Struktur der Einkristalloberfläche gezogen werden. Die Methode ist dabei auf eine Längenskala von Zehntel-Å empfindlich.

Durch die Untersuchung der (100)- und (001)-Fläche konnten alle Gitterparameter des  $\beta$ - $Ga_2O_3$ -Systems bestimmt werden. Die Messungen an der (100)-Fläche lieferten Aufschluss über die Terminierung der Oberfläche. Es zeigte sich eine klare Präferenz für eine der zwei in der Literatur besprochenen Terminierungen. Für die gefundene Terminierung wurde durch eine Anpassung von Simulationen an das Experiment ein alternatives Strukturmodell entwickelt.

Aufbauend auf die Entdeckung der longitudinalen Kohärenz bei der streifenden Streuung von Atomen an der  $\alpha$ - $Al_2O_3(11\bar{2}0)$ -Fläche, konnten die vorhandenen Messungen erweitert und ein effektives Programm zur Auswertung entwickelt werden. Bei Messungen an der  $\alpha$ - $Al_2O_3(0001)$ -Fläche konnte ebenfalls das Auftreten einer longitudinalen Kohärenz beobachtet werden. Für beide Flächen wurden die jeweiligen Gitterparameter mit höchster Präzision bestimmt. Zusätzlich konnte die Intensitätsverteilung in den Streubildern durch ein einfaches Modell beschrieben werden. Nicht zuletzt konnte, erstmalig in dieser Arbeitsgruppe, ein Wechselwirkungspotential für die Streuung von  $H_2$ -Molekülen an einer  $KCl(001)$ -Fläche abgeleitet werden. Der im Experiment beobachtete drastische Unterschied in der Intensitätsmodulation der Beugungsreflexe mit der senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge für gestreute Atome und Moleküle konnte mit Simulationen unter Verwendung des abgeleiteten Wechselwirkungspotentials erklärt werden.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>v</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>ix</b>
<b>1 Einleitung und Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2 Die streifende Streuung schneller Atome und Moleküle (FAD)</b>	<b>5</b>
2.1 Klassische Näherung . . . . .	7
2.2 Semi-Klassische Näherung . . . . .	12
2.3 Wechselwirkungspotentiale . . . . .	24
2.4 Linienbreite . . . . .	29
<b>3 Experimenteller Aufbau</b>	<b>33</b>
3.1 Der Beschleuniger . . . . .	33
3.2 Die UHV-Streukammer . . . . .	36
3.3 Der Detektor . . . . .	38
3.4 Eichung . . . . .	41
<b>4 Galiumoxid</b>	<b>43</b>
4.1 Die $\beta$ -Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (100)-Fläche . . . . .	45
4.1.1 Experimentelle Grundlagen . . . . .	45
4.1.2 Probenpräparation . . . . .	48
4.1.3 Ergebnisse und Diskussion . . . . .	50
4.2 Die $\beta$ -Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (001)-Fläche . . . . .	66
4.2.1 Experimentelle Grundlagen . . . . .	66
4.2.2 Probenpräparation . . . . .	67
4.2.3 Ergebnisse und Diskussion . . . . .	69
4.3 Zusammenfassung . . . . .	72
<b>5 Aluminiumoxid</b>	<b>73</b>
5.1 Erweiterung der Streutheorie auf 3D . . . . .	74
5.2 Die $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <i>a</i> -plane . . . . .	81
5.2.1 Experimentelle Grundlagen . . . . .	81
5.2.2 Probenpräparation . . . . .	82
5.2.3 Ergebnisse und Diskussion . . . . .	85
5.3 Die $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <i>c</i> -plane . . . . .	91
5.3.1 Experimentelle Grundlagen . . . . .	91
5.3.2 Probenpräparation . . . . .	95
5.3.3 Ergebnisse und Diskussion . . . . .	97
5.4 Zusammenfassung . . . . .	105

<b>6 Die streifende Streuung an einer Ionenkristalloberfläche mit Wasserstoffmolekülen</b>	<b>107</b>
6.1 Das Wechselwirkungspotential . . . . .	107
6.1.1 Repulsives Paarpotential $V_{Rep}$ . . . . .	107
6.1.2 Attraktive Paar-Potentiale $V_6$ und $V_8$ . . . . .	110
6.1.3 Langreichweitiges Paarpotential $V_3$ . . . . .	115
6.1.4 Die Quadrupolwechselwirkung $V_{els}$ . . . . .	117
6.1.5 Dipol-Wechselwirkung mit der Oberfläche $V_{ind}$ . . . . .	117
6.1.6 Ausrichtung der Moleküle . . . . .	120
6.2 Simulation der <i>FAD</i> -Messungen . . . . .	125
6.3 Zusammenfassung . . . . .	129
<b>7 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>131</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>135</b>
<b>Publikationsliste</b>	<b>153</b>
<b>Danksagung</b>	<b>155</b>
<b>Selbständigkeitserklärung</b>	<b>157</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Wechselwirkungslänge . . . . .	5
2.2	Mittelung des Wechselwirkungspotentials $He-\beta-Ga_2O_3(100)$ entlang der Streurichtung . . . . .	6
2.3	Streugeometrie der streifenden Streuung ohne azimutale Verdrehung .	8
2.4	Klassische Streuung eines $He$ -Atoms . . . . .	9
2.5	Übergang von klassischer Streuung zur Beugung . . . . .	10
2.6	Semi-klassische Streuung eines $He$ -Atoms . . . . .	13
2.7	Intensitätsverteilung für die Streuung eines $He$ -Atoms . . . . .	18
2.8	Ewaldkonstruktion für ein zweidimensionales Kristallgitter. . . . .	21
2.9	Erstellung einer Beugungskarte . . . . .	22
2.10	Beispiel für das Wechselwirkungspotential des Young-Typs . . . . .	24
2.11	Anpassung des HF-Potentials für die Wechselwirkung $He-Ga_2O_3$ und $He-Al_2O_3$ . . . . .	29
3.1	Aufbau des EZR-Beschleunigers . . . . .	34
3.2	Aufbau der Streukammer . . . . .	37
3.3	Der MCP-Detektor . . . . .	39
4.1	Volumeneinheit zelle eines $Ga_2O_3$ -Kristalls . . . . .	45
4.2	Struktur der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	47
4.3	Probenhalter für die Galliumoxid-Kristalle . . . . .	48
4.4	Nach dem Ausheilen zersetzter $Ga_2O_3$ -Kristall . . . . .	49
4.5	Auf dem Probenhalter montierter $Ga_2O_3$ -Kristall . . . . .	49
4.6	Präparationsfortschritt der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	50
4.7	Beispielmessungen entlang vier verschiedener Kristallrichtungen der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	51
4.8	Symmetriebreiten der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	52
4.9	Experimentelle Beugungskarten ( $^4He$ ) entlang der [001]- und [010]- Richtung der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	52
4.10	Simulierte Beugungskarten ( $^4He$ ) für die $A$ - und $B$ -Terminierung ent- lang der [001]-Richtung der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	53
4.11	Simulierte Beugungskarten ( $^4He$ ) für die relaxierte $B$ -Terminierung entlang der [001]-Richtung der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	54
4.12	Simulierte Beugungskarten ( $^4He$ ) für die $B^*$ -Terminierung entlang der [001]-Richtung der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	55
4.13	Ionenpositionen der $B^*$ -Terminierung der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche entlang der [010]-Richtung . . . . .	56
4.14	Klassische Regenbogenstreuung ( $^4He$ ) an der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche ent- lang [010]-Richtung und Vergleich mit Simulationen . . . . .	57
4.15	Experimentelle ( $^4He$ ) und für die $A$ , $B$ -, relaxierte $B$ - sowie $B^*$ - Terminierung simulierte Regenbogenwinkel . . . . .	58
4.16	Simulierte Beugungskarten ( $^4He$ ) für die $A$ -, $B$ - sowie relaxierte $B$ - Terminierung entlang der [010]-Richtung der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . .	59

4.17	Simulierte Beugungskarten ( $^4\text{He}$ ) für die $B^*$ -Terminierung entlang der $[010]$ -Richtung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche . . . . .	60
4.18	Ionenpositionen der $B^*$ -Terminierung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche entlang der $[001]$ -Richtung . . . . .	60
4.19	Simulierte Beugungsspektren ( $^4\text{He}$ ) für die $B^*$ -Terminierung entlang der $[001]$ - und $[010]$ -Richtung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche . . . . .	61
4.20	Simulierte Beugungskarten ( $^3\text{He}$ ) für die $A$ -, $B$ -, relaxierte $B$ - sowie $B^*$ -Terminierung entlang der $[001]$ -Richtung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche .	62
4.21	Simulierte Beugungskarten ( $^3\text{He}$ ) für die $A$ -, $B$ -, relaxierte $B$ - sowie $B^*$ -Terminierung entlang der $[010]$ -Richtung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche .	63
4.22	Simulierte Beugungskarten ( $^4\text{He}$ ) für die $B^*$ -Terminierung für verschiedene Anteile der $A$ -Terminierung entlang der $[001]$ -Richtung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche . . . . .	65
4.23	Struktur der $\text{Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche . . . . .	67
4.24	Form des $\text{Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Kristalls . . . . .	68
4.25	Montierter $\text{Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Kristall . . . . .	68
4.26	Präparationsfortschritt der $\text{Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche . . . . .	69
4.27	Beispielmessungen entlang drei verschiedener Kristallrichtungen der $\text{Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche . . . . .	70
4.28	Streuverteilung entlang der $[100]$ -Richtung der $\text{Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche . .	71
4.29	Symmetriebreiten der $\text{Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche . . . . .	71
5.1	Veröffentlichte FAD-Messungen an der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche . . . . .	73
5.2	Streuometrie der streifenden Streuung mit azimuthaler Verdrehung .	75
5.3	Deutung der veröffentlichten FAD-Messungen an der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche . . . . .	77
5.4	Strukturmodell der $(12\times 4)$ -Rekonstruktion der Saphir- $(11\bar{2}0)$ -Fläche .	82
5.5	Nach dem Ausheilen im UHV zerstörter Saphir-Kristall . . . . .	83
5.6	Hitzeschild für die Saphir- $(11\bar{2}0)$ -Kristalle . . . . .	84
5.7	Präparationsfortschritt der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche . . . . .	85
5.8	Zusammenstellung der Streuung von verschiedenen Projektilen an der Saphir- $(11\bar{2}0)$ -Fläche entlang der $[\bar{1}100]$ -Richtung . . . . .	86
5.9	Auswerteprogramm für die Messungen an $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Kristallen . . . . .	87
5.10	Regressionen für die für die Streuung entlang der $[\bar{1}100]$ -Richtung der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche . . . . .	90
5.11	Berechnete Intensitäten der Beugungsreflexe für die Streuung entlang der $[\bar{1}100]$ -Richtung der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche . . . . .	91
5.12	Auswertung der Korrugation für die Streuung entlang der $[\bar{1}100]$ -Richtung der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche bei verschiedenen azimuthalen Verdrehungen . . . . .	92
5.13	Strukturmodell der $(\sqrt{3}\bar{1}\times\sqrt{3}\bar{1}) R \pm 9^\circ$ -Rekonstruktion der Saphir- $(0001)$ -Fläche nach <i>Barth et al.</i> . . . . .	94
5.14	Strukturmodell der $(\sqrt{3}\bar{1}\times\sqrt{3}\bar{1}) R \pm 9^\circ$ -Rekonstruktion der Saphir- $(0001)$ -Fläche nach <i>Lauritsen et al.</i> . . . . .	94
5.15	Hitzeschild für die Saphir- $(0001)$ -Kristalle . . . . .	95
5.16	Präparationsfortschritt der $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ -Fläche . . . . .	96
5.17	Aus der UHV-Kammer ausgebauter Saphir- $(0001)$ -Kristall mit dem Probenhalter . . . . .	97

5.18	Zusammenstellung von Beispielmessungen an der $Al_2O_3(0001)$ -Fläche entlang der Richtungen $[2\bar{1}10]$ und $[10\bar{1}0]$ . . . . .	98
5.19	Beugungsbilder, mit und ohne azimutale Verdrehung, für die Streuung von $H$ -Projektilen an der $Al_2O_3(0001)$ -Fläche entlang der $[2\bar{1}10]$ -Richtung . . . . .	99
5.20	Auswertung der azimutalen Abstände der Beugungsreflexe der Streuung entlang der $[2\bar{1}10]$ -Richtung der $Al_2O_3(0001)$ -Fläche . . . . .	100
5.21	Überlagerung der $\pm 9^\circ$ -Verdrehungen . . . . .	101
5.22	Vergleich der gemessenen und berechneten Positionen der Beugungsreflexe der Messungen an der Saphir-(0001)-Fläche entlang der $[2\bar{1}10]$ -Richtung . . . . .	101
5.23	Auswertung der Gitterparameter der $(\sqrt{31} \times \sqrt{31})R \pm \arctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion der Saphir-(0001)-Fläche . . . . .	102
5.24	Vergleich zwischen der experimentellen Beugungskarten mit und ohne Abschwächung des spekularen Reflexes für die Streuung entlang der $[10\bar{1}0]$ -Richtung einer der beiden Domänen der $\sqrt{31}$ -Rekonstruktion .	103
5.25	Experimentelle und simulierte Beugungskarte der Messung entlang der $[10\bar{1}0]$ -Richtung einer der beiden verdrehten Domänen der Saphir-(0001)-Fläche . . . . .	104
6.1	FAD-Messungen an der $KCl(001)$ -Fläche entlang der $[100]$ -Richtung .	108
6.2	FAD-Messungen an der $KCl(001)$ -Fläche entlang der $[110]$ -Richtung .	108
6.3	Abhängigkeit des Potentials von der Ausrichtung des $H_2$ -Moleküls . .	119
6.4	Quadrupolmoment des $H_2$ -Moleküls . . . . .	121
6.5	Anteil der Quadrupolwechselwirkung am Gesamtpotential $V_{Mol}$ in $[110]$ -Richtung der $KCl(001)$ -Fläche . . . . .	122
6.6	Abhängigkeit des Potentials von der Ausrichtung des $H_2$ -Moleküls entlang der $[100]$ -Richtung der $KCl(001)$ -Fläche . . . . .	123
6.7	Abhängigkeit des Potentials von der Ausrichtung des $H_2$ -Moleküls entlang der $[110]$ -Richtung der $KCl(001)$ -Fläche . . . . .	124
6.8	Vergleich der experimentellen und simulierten Beugungskarte für die Streuung in $[100]$ - und $[110]$ -Richtung der $KCl(001)$ -Fläche . . . . .	126
6.9	Simulierte Beugungskarten entlang der $[110]$ -Richtung der $KCl(001)$ -Fläche für einzelne Ausrichtungen des Moleküls . . . . .	128





# Tabellenverzeichnis

2.1	Anpassungsparameter des HF-Potentials für die Wechselwirkung $He-Ga_2O_3$ und $He-Al_2O_3$ . . . . .	28
4.1	Symmetriebreiten der $\beta-Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	51
4.2	Relaxationen der $Ga_2O_3(100)$ -Fläche . . . . .	64
4.3	Symmetriebreiten der $Ga_2O_3(001)$ -Fläche . . . . .	70
5.1	Gitterparameter der (12x4)-Rekonstruktion der Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Fläche . . . . .	89
5.2	Gitterparameter der $(\sqrt{31} \times \sqrt{31})R \pm \arctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion der Saphir-(0001)-Fläche . . . . .	103
6.1	Potentialparameter für $V_{rep}$ . . . . .	109
6.2	Dispersionskoeffizient $C_6$ . . . . .	111
6.3	Dispersionskoeffizient $C_8$ . . . . .	112
6.4	Dispersionskoeffizient $C_3$ . . . . .	116



# 1 Einleitung und Motivation

Im Fokus dieser und vieler anderer Arbeiten steht die Untersuchung der Struktur von Festkörperoberflächen. Die Oberflächenstruktur hat einen entscheidenden Einfluss auf die physikalischen Eigenschaften sowie das chemische Verhalten der Probe. Für Anwendungen im Bereich von Materialwissenschaften, Physik, Chemie und Biologie ist die Kenntnis der Oberflächenstruktur also essentiell.

Eine in der Literatur oft genannte Motivation für die Untersuchung bestimmter Systeme ist die heterogene Katalyse [1–3]. Dabei fungiert die Oberfläche als Katalysator<sup>1</sup> für einen bestimmten chemischen Prozess. In der industriellen Anwendung sollte die aktive Fläche des Katalysators demnach möglichst groß sein, wodurch oft mit porösen Strukturen gearbeitet wird. Untersuchungen zu den an der Oberfläche ablaufenden Prozessen, der Oberflächenstruktur etc. sind an diesen Systemen, bei den entsprechenden Bedingungen, nicht möglich. Der einzige experimentelle Zugang ist dann die Untersuchung von entsprechenden Modellsystemen [2, 4, 5].

Die Struktur von Halbleiter- und Isolatoroberflächen ist für die Elektroindustrie besonders interessant [1]. Bauteile werden oft als Schichtsysteme hergestellt. Halbleiter und Isolatoren sind Teil dieser Schichtsysteme oder dienen als Substrat. Je kleiner die Bauteile und damit desto dünner die Schichten sind, desto entscheidender ist die Kenntnis der Oberflächenstruktur der einzelnen Schichten, sodass die Wahl des Aufbaus des Schichtsystems angepasst werden kann oder muss.

In den letzten Jahrzehnten fand eine stetige Entwicklung verschiedener experimenteller Methoden zur strukturellen Charakterisierung von Kristalloberflächen statt [1, 6, 7]. Die prominentesten Methoden basieren auf der Streuung von Elektronen, wie zum Beispiel die Streuung niederenergetischer Elektronen (*LEED*) und die Beugung hochenergetischer Elektronen bei Reflexion (*RHEED*), oder auf der Streuung von Photonen, wie die oberflächensensitive Röntgenbeugung (*SXRD*). Eine auf der Streuung von Atomen basierende Methode ist die thermische Atomstreuung (*TEAS*) [8]. Es können aus den Messungen anhand der Positionen der Beugungsreflexe Rückschlüsse auf Symmetrien gezogen werden. Eine Analyse der Intensitäten gibt Aufschluss über die Struktur innerhalb dieser Symmetrieobjekte. Um eine Oberflächensensitivität zu erhalten und Prozesse der Dekohärenz zu unterdrücken, muss bei der Atomstreuung jedoch mit Projektilenergien im Bereich von 100 meV gearbeitet werden [9]. Dadurch ist die Effizienz des Nachweises der gestreuten Projektile relativ gering [10–12].

Die Beschreibung der Beugung findet im Wesentlichen im reziproken Raum statt [13]. Messungen im Realraum können mit Methoden, wie dem Raster-Tunnel-Mikroskop (*STM*) oder Raster-Kraft-Mikroskop (*AFM*) gewonnen werden. All diesen Methoden ist gemeinsam, dass sie keine direkten Strukturbilder liefern, sondern ein Abbild der Ladungsverteilung erzeugen. Erst der Vergleich mit entsprechenden Simulationen zu verschiedenen möglichen Oberflächenstrukturen lässt quantitative

---

<sup>1</sup>Ein Katalysator ist ein Stoff oder ein Material, das aus einer chemischen Reaktion unverändert hervorgeht, diese aber beschleunigt. Dies geschieht durch das Herabsenken der Aktivierungsenergie der Reaktion.

Aussagen über die dem Streubild zu Grunde liegende Struktur zu [13, 14].

Für ein vollständiges Bild der Oberfläche, können Methoden zur Messung der elektronischen Struktur, wie die Auger-Elektronen-Spektroskopie (*AES*) und die Photoelektron-Spektroskopie (*PES*), oder schwingungsspektroskopische Methoden, wie die Infrarotabsorptions- (*IRAS*) und die Elektronenenergieverlust-Spektroskopie (*HREELS*), angewandt werden. Sie lassen Rückschlüsse auf die chemische Zusammensetzung und die Bindungsarten auf der Oberfläche zu [13].

Die Verwendung und Kombination dieser und weiterer experimenteller Methoden und der jeweilige Vergleich mit theoretischen Berechnungen ist dann in der Lage, ein vollständiges Bild der Oberflächeneigenschaften zu erstellen.

In dieser Arbeit wird die Methode der streifenden Streuung schneller Atome und Moleküle [15] angewandt. Dabei werden Projektile (Atome, Moleküle, Ionen) unter streifendem Einfall (Einfallswinkel  $\Phi_{in} \leq 2^\circ$ ) von einer Oberfläche gestreut. Für hohe Energien, lässt sich der Streuprozess klassisch beschreiben. Bei hinreichend kleinen Energien treten jedoch Beugungseffekte auf. Die Beobachtung von Beugungseffekten beim Streuprozess kann im Rahmen der Quantenmechanik, genauer des Welle-Teilchen-Dualismus erklärt werden. Der Welle-Teilchen-Dualismus für Atome ist eine beeindruckende Eigenschaft der Quantenphysik. So kommt es durch die Interferenz von Materiewellen zu einer modulierten Intensitätsverteilung der gestreuten Projektile. Die Analyse dieser Intensitätsverteilung in Abhängigkeit zur Senkrechterenergie erlaubt Rückschlüsse auf die Oberflächenstruktur. Die Entdeckung der Beugung war überraschend. Jedoch werden durch den streifenden Einfall und die entstehende Mittelung des Potentials über viele Atome oder Ionen entlang der Streurichtung zu erwartende Prozesse, die eine Dekohärenz bewirken, unterdrückt [16].

Durch den geringen Einfallswinkel ist eine Sensitivität auf die oberste Lage der Oberfläche gegeben. Gleichzeitig ist durch die hohe Projektilenergie im Bereich von bis zu einigen keV eine effektive Detektion der Projektile gesichert [10–12]. Die Projektileströme können daher gering gehalten werden, wodurch eine Schädigung der Oberfläche durch die Projektile nahezu ausgeschlossen ist [15]. Der größte Vorteil der streifenden Streuung schneller Atome offenbart sich jedoch erst bei der Untersuchung von Halbleitern mit großer Bandlücke und Isolatoren. Viele der oben genannten Methoden können die Oberfläche aufladen, wodurch die Messungen verfälscht oder unmöglich werden. Nur durch teilweise aufwändige Maßnahmen können dann mit diesen Methoden Messungen durchgeführt werden. Zum Beispiel können Isolatoren als Schichten auf ein Metallsubstrat epitaktisch aufgewachsen werden. Bei Methoden wie *LEED* kann es dann jedoch zu Effekten wie der Mehrfachstreuung kommen, wodurch die Analyse der Messdaten deutlich erschwert wird. Ferner muss sichergestellt sein, dass die Filme in der Konfiguration des Volumenkristalls aufwachsen.

In dieser Arbeit soll die Methode der streifenden Streuung schneller Atome und Moleküle vorgestellt werden. Die Beschreibung findet zunächst klassisch statt. Um die Beugungseffekte zu erklären, wird die Theorie auf die Quantenmechanik in einer semi-klassischen Beschreibung erweitert. Nach der theoretischen Einführung in Kapitel 2 und der Vorstellung des Experimentellen Aufbaus in Kapitel 3, werden im Kapitel 4 die Messungen an dem System  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  präsentiert. Es war möglich Messungen an den beiden technisch relevanten Flächen (100) und (001) durchzuführen. Im Kapitel 5 sind die Messergebnisse am System  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  zu finden. An diesem System wurde von *Busch et al.* erstmalig eine longitudinale Kohärenz in der streifenden Streuung von Atomen nachgewiesen. Dies führt zu spannenden Effekten

---

bei dem Streuprozess. Erstmalig war es in dieser Arbeitsgruppe möglich Simulationen für die Streuung von  $H_2$ -Molekülen an einer  $KCl(001)$ -Fläche durchzuführen. Eine Beschreibung des komplizierten Wechselwirkungspotentials und Diskussion der Effekte wird in Kapitel 6 stattfinden. Eine ausführliche Zusammenfassung der Ergebnisse erfolgt im Kapitel 7.

Die vorliegende Arbeit wurde am Lehrstuhl „Physik der Grenzflächen und dünnen Schichten“ am Institut für Physik der Humboldt-Universität zu Berlin unter Leitung von Prof. Dr. H. Winter realisiert. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft unterstützte das Vorhaben zudem finanziell im Rahmen des Projektes Wi 1336.



## 2 Die streifende Streuung schneller Atome und Moleküle (FAD)

Die in dieser Arbeit verwendeten Methoden zur Untersuchung der Oberflächenstrukturen der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ - und  $(001)$ - sowie der  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ - und  $(0001)$ -Fläche basieren auf der streifenden Streuung von Atomen und Molekülen an atomar glatten, monokristallinen Festkörperoberflächen. Dabei haben die Projektile, vornehmlich Helium-3- ( $^3\text{He}$ ), Helium-4- ( $^4\text{He}$ ) und Wasserstoff-Atome ( $\text{H}$ ) sowie Moleküle ( $\text{H}_2$ ), Energien von  $E_0 = 100 \text{ eV} - 80 \text{ keV}$  bei Einfallswinkeln von  $\Phi_{in} \leq 2^\circ$ . Durch den flachen Einfallswinkel, ist die Parallelenergie der Projektile  $E_{||} = E_0 \cdot \cos^2(\Phi_{in}) \approx 0.999 \cdot E_0$  nahezu unverändert, während die Senkrechterenergie  $E_{\perp} = E_0 \cdot \sin^2(\Phi_{in}) \approx 0.001 \cdot E_0$  (jeweils für  $\Phi_{in} = 2^\circ$ ) im Bereich von wenigen eV oder kleiner liegt. Parallel- und Senkrechtbewegung sind nahezu vollständig voneinander entkoppelt. Weiterhin erreicht man durch die geringe Senkrechterenergie eine hohe Oberflächensensitivität, da die Projektile eine zu kleine Senkrechterenergie besitzen, um den repulsiven Anteil des Oberflächenpotentials zu überwinden. Das ist ein großer Vorteil gegenüber den üblichen Streumethoden mit Einfallswinkeln im Bereich von mehreren Grad bis zu  $90^\circ$  [17–20], bei denen die Energie der Projektile entsprechend niedrig gewählt werden muss (im Bereich von  $E = 100 \text{ meV}$  [9]), um eine Sensitivität auf die oberste Monolage zu erreichen. Durch den streifenden Einfall und die dadurch möglichen hohen Primärenergien der Projektile, ist die Detektoreffizienz hoch und der Projektilstrom kann auf wenige Femtoampere gesenkt werden [10–12]. Somit werden die Integrationszeiten der Messungen kurz gehalten und die Schädigung der Oberfläche ist durch den geringen Projektilstrom ausgeschlossen. Es soll zunächst eine Abschätzung vorgenommen werden: nähert sich ein Projektil unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 1^\circ$  der Oberfläche um einen Betrag von  $\Delta z = 1 \text{ a.u.}$ , so bewegt es sich über eine Strecke von  $\Delta x = \frac{\Delta z}{\tan(\Phi_{in})} = 53 \text{ a.u.}$  entlang der Oberfläche (siehe Abbildung 2.1).

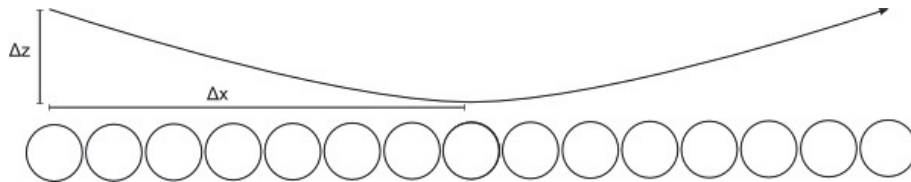


Abbildung 2.1: Graphische Darstellung zur Abschätzung der Wechselwirkungslänge von Projektilen über einer Festkörper-Oberfläche.

Diese Abschätzung zeigt, dass die Projektile entlang ihrer Flugbahn während der Zeit des Stoßprozesses über große Längen mit einer Vielzahl von Oberflächenatomen wechselwirken. Effektiv kann das Wechselwirkungspotential dadurch entlang

der Flugrichtung gemittelt werden (siehe Abbildung 2.2), wodurch der eigentlich dreidimensionale Streuprozess auf zwei Dimensionen reduziert wird.

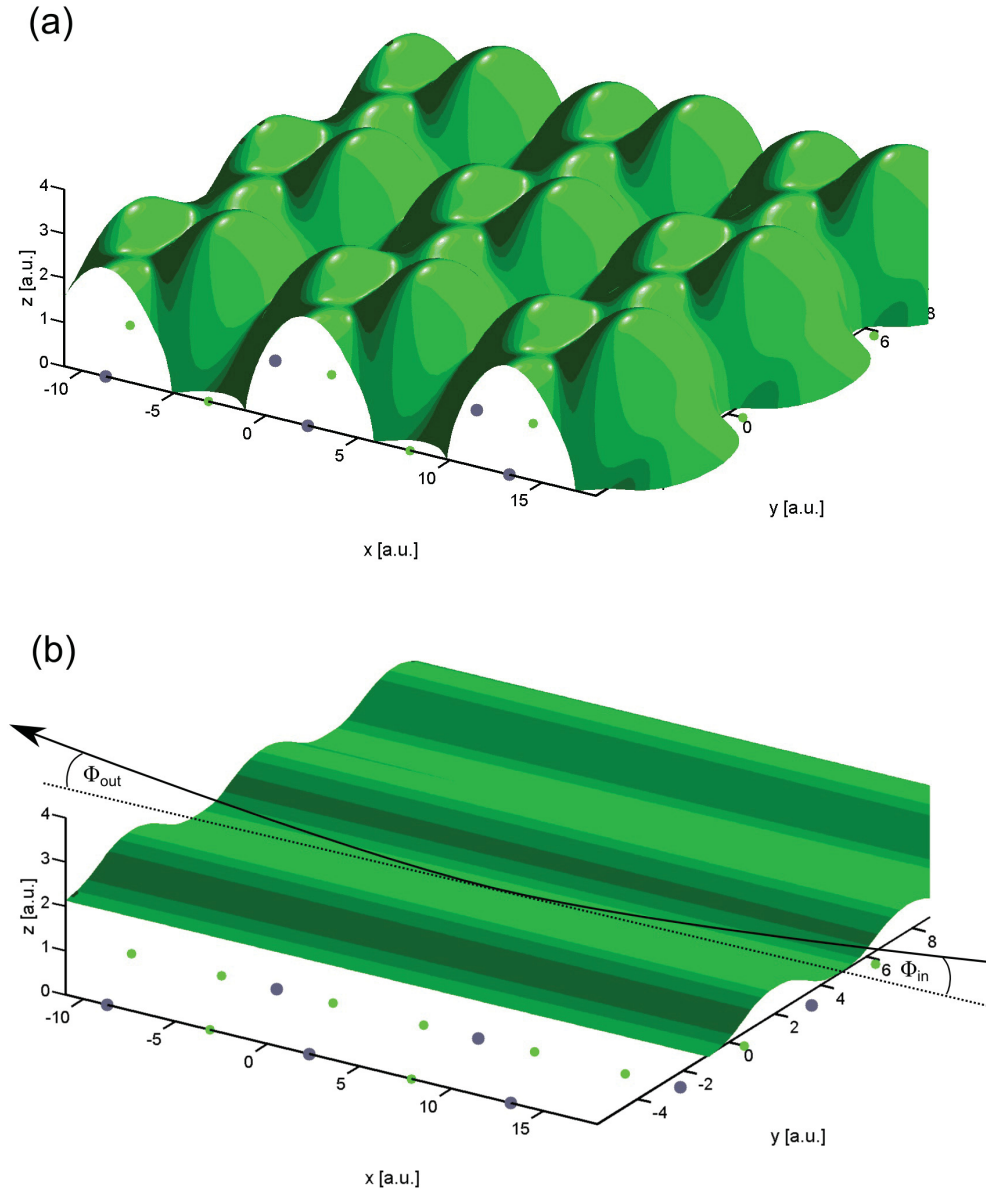


Abbildung 2.2: Äquipotentiallinie für  $V_{WW} = 2$  eV für das Wechselwirkungspotential für die Streuung mit  $He$ -Projektilen an einer  $\beta-Ga_2O_3(100)$  Oberfläche ( $B$ -Terminierung). (a) ungemitteltes Potential. (b) entlang der  $[010]$ -Richtung gemittelt.  $\Phi_{in}$  und  $\Phi_{out}$  bezeichnen den polaren Einfalls- bzw. polaren Austrittswinkel des Projektils. Grüne Kreise bezeichnen Sauerstoff-, graue Kreise bezeichnen Galiumione. Alle Ionen wurden auf  $z = 0$  projiziert.

Festkörperoberflächen lassen sich durch die Angabe von mindestens zwei Basisvektoren



ren beschreiben. Diese spannen eine sogenannte Einheitszelle auf. Die Oberflächenstruktur lässt sich durch die Translation der Einheitszelle um ganzzahlige Vielfache der Basisvektoren vollständig beschreiben. Für die Beschreibung eines Volumenkristalls benötigt man mindestens drei Basisvektoren. Kristallrichtungen werden über die Indizes  $u$ ,  $v$  und  $w$ , die zur Beschreibung der Richtung durch die Basisvektoren benötigt werden, mit  $[uvw]$  beschrieben. Äquivalente Richtungen werden mit  $\langle uvw \rangle$  zusammengefasst. Flächen werden über *Miller'sche Indizes*  $h$ ,  $k$  und  $l$  beschrieben, die sich aus den Vielfachen der reziproken  $u$ ,  $v$  und  $w$  ergeben. Eine spezielle Oberfläche wird dann mit  $(hkl)$  angegeben. Eine Schar an äquivalenten Ebenen wird mit  $\{hkl\}$  bezeichnet. Die *Miller'schen Indizes* entsprechen gerade der Kristallrichtung senkrecht auf der Oberflächenebene.

Bei monokristallinen Festkörperoberflächen ist es klar ersichtlich, dass der Streuprozess stark abhängig von der Kristallorientierung ist. Diese Abhängigkeit wird als „Channeling“ bezeichnet. Es wird zusätzlich zwischen Channeling und Hyperchanneling unterschieden. Es ist prinzipiell möglich, dass aufgrund der niedrigen Potentialbarriere die Projektile während des Streuprozesses trotz des Channelings in benachbarte axiale Kanäle wechseln. Beim Hyperchanneling tritt dieser Effekt nicht auf [21]. Man betrachtet niedrig-indizierte Kristallrichtungen. Durch die hohe Ordnung und Symmetrie der Oberflächenatome, werden diese durch Atomreihen definiert, die durch ihren Abstand zueinander einen „Kanal“ aufspannen. Werden die Projektile entlang einer dieser niedrig-indizierten Richtung der Oberfläche des zu untersuchenden Kristalls (Target) gestreut, erfahren sie zwischen den Atom-Reihen dieser Richtung eine Serie an Kleinstwinkel-Stößen. So wird das Projektil entlang dieser Richtung geführt [21, 22]. Das durch die Mittelung des Wechselwirkungspotentials entlang der Streurichtung entstehende effektive Potential hat im einfachsten Fall eine sinusartige Form. Abhängig von der Oberflächenstruktur, kann das gemittelte Potential jedoch eine beliebig komplizierte Form annehmen.

Die folgenden Abschnitte sollen sich zunächst mit der Theorie der Streuprozesse befassen, sich dabei aber auf einen zum Verständnis dieser Arbeit notwendigen Rahmen beschränken. Für weitere Details sei auf weiterführende Arbeiten verwiesen.

## 2.1 Klassische Näherung

Zuerst sollen die Bezeichnungen bezüglich der Streugeometrie festgelegt werden. Eine Darstellung der Bezeichnungen der verschiedenen Winkel, die in der Beschreibung der Streuung vorkommen werden, ist in Abbildung 2.3 zu sehen. Es soll hier zunächst von der Streuung entlang einer niedrig-indizierten Richtung der Oberfläche ausgegangen werden. Nimmt man an, dass sich die Projektile entlang der  $x$ -Richtung bewegen, so ist für die Beschreibung der Streuung aufgrund der Mittelung des Potentials nur die Betrachtung der  $y$ - $z$ -Ebene interessant (siehe Abbildung 2.4). Die einfachste Näherung der Form eines so gemittelten Potentials ist eine sinusförmige Äquipotentiallinie mit der Korrugation  $\varsigma$

$$\varsigma = \frac{1}{2} \cdot \varsigma_{max} \cdot \cos\left(y \frac{2\pi}{d}\right) \quad (2.1)$$

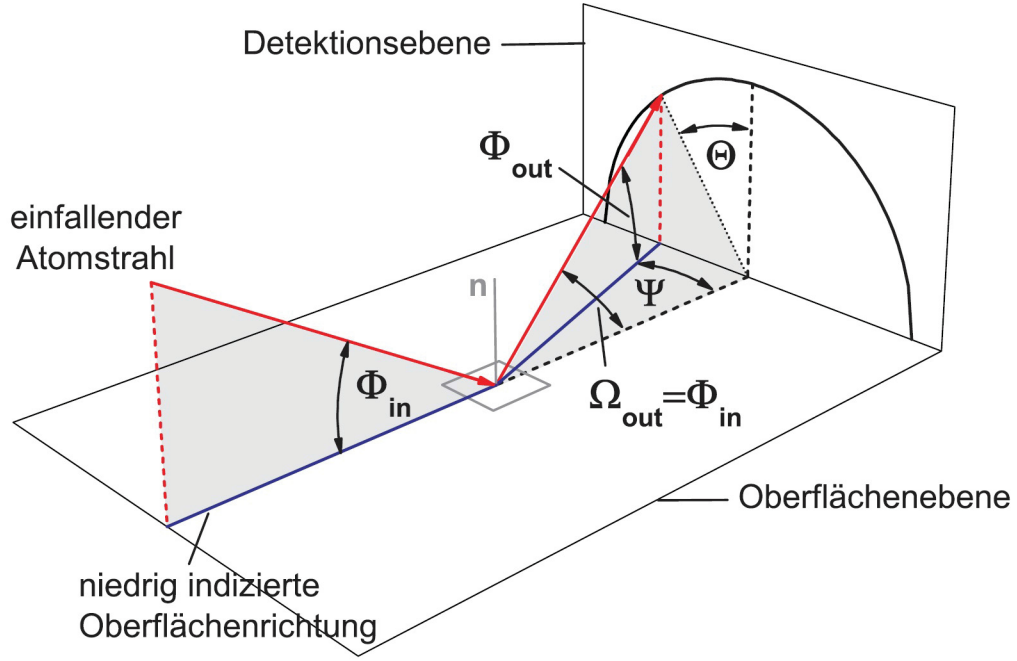


Abbildung 2.3: Darstellung der Streugeometrie für die streifende Streuung schneller Atome an einer Oberfläche (Streuung in der Oberflächenebene). Die entstehenden Winkelverteilungen der gestreuten Projektile werden dann in der Detektorebene aufgenommen. (Abbildung entnommen aus [23])

wobei  $d$  die Breite des Kanals und  $\varsigma_{max}$  die Amplitude der Korrugation, und die  $y$ -Richtung senkrecht zur Einfallsrichtung der Projektile, in der Oberflächenebene ist. Die Korrugation, der räumliche Abstand des Maximums und des Minimums einer Äquipotentiallinie, ist von der Senkrechterenergie des Projektils abhängig. Durch eine höhere Senkrechterenergie gelangen die Projektile näher an die Oberfläche. In der Regel vergrößert sich dadurch die Korrugation. Als Vereinfachung wird das Wechselwirkungspotential  $V$  in „Harter-Wand“-Näherung behandelt:

$$V = \begin{cases} 0, & \text{sonst} \\ \infty, & z < \varsigma(y) \end{cases} \quad (2.2)$$

Aufgrund der sinusartigen Form des Potentials, werden die Projektile entlang eines Kreisbogens mit dem Radius  $\Phi_{in}$  gestreut. Hierbei handelt es sich um den Laue-Kreis nullter Ordnung (die Begründung für die Bezeichnung „Laue-Kreis“ folgt in der semi-klassischen Behandlung des Streuprozesses). Somit ist für das Experiment die Analyse des Ablenk winkels  $\Theta$  in der Detektorebene hinter dem Kristall entscheidend. Dieser hängt vom Stoßparameter  $b$  ab. Über einfache funktionale Zusammenhänge ergibt sich der Ablenk winkel aus dem negativen Anstieg an der Stelle  $y = b$  des Potentials. Das bedeutet:

$$\tan\left(\frac{\Theta}{2}\right) = -\left(\frac{d\varsigma(y)}{dy}\right)_{y=b} = \frac{\pi}{d} \cdot \varsigma_{max} \cdot \left(\sin\left(y\frac{2\pi}{d}\right)\right)_{y=b} \quad (2.3)$$

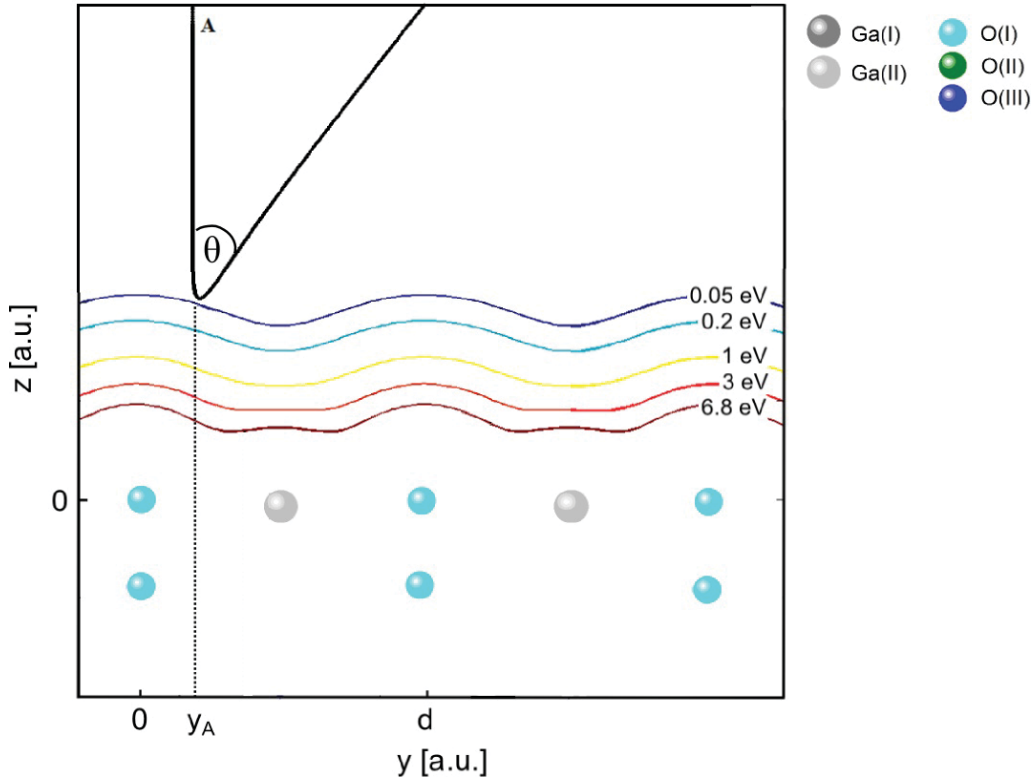


Abbildung 2.4: Darstellung der Trajektorie  $A$  eines  $He$ -Projektils mit einer Energie von  $E = 500$  eV bei der Streuung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.5^\circ$  an der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche entlang der  $[010]$ -Richtung mit dem Ablenkwinkel  $\Theta$  in der  $y$ - $z$ -Ebene. Dargestellt und farblich markiert sind die Äquipotentiallinien des Wechselwirkungspotentials (Hartree-Fock-Potential) für verschiedene Energien.

Somit gilt für den Ablenkwinkel allgemein

$$\Theta(y) = 2 \cdot \arctan \left( \frac{\pi}{d} \cdot \varsigma_{max} \cdot \sin \left( \frac{2\pi}{d} \cdot y \right) \right) \quad (2.4)$$

Diese Funktion hat ein Maximum. Diesen maximalen Streuwinkel  $\Theta_{RB}$  nennt man Regenbogenwinkel. Die Bezeichnung stammt von der Analogie zur Beschreibung des atmosphärischen Regenbogens [23–25]. Für den klassischen Regenbogenwinkel gilt

$$\Theta_{RB} = 2 \cdot \arctan \left( \frac{\pi}{d} \cdot \varsigma_{max} \right) \quad (2.5)$$

Durch die Abhängigkeit des Ablenkwinkels von der Korrugation, hat die Senkrechterenergie des Projektils einen entscheidenden Einfluss auf den Regenbogenwinkel. Der Regenbogenwinkel verhält sich im Fall des einfachen sinusförmigen Potentials etwa proportional zur Korrugation.

Neben der Winkelverteilung der gestreuten Projektile, ist die Intensitätsverteilung  $I$  der gestreuten Projektile entlang des Kreisbogens interessant. Für diese gilt allgemein  $I \sim |A(\Theta)|^2$  mit der Streuamplitude  $A$ , die sich im klassischen Fall berechnet nach [26, 27]

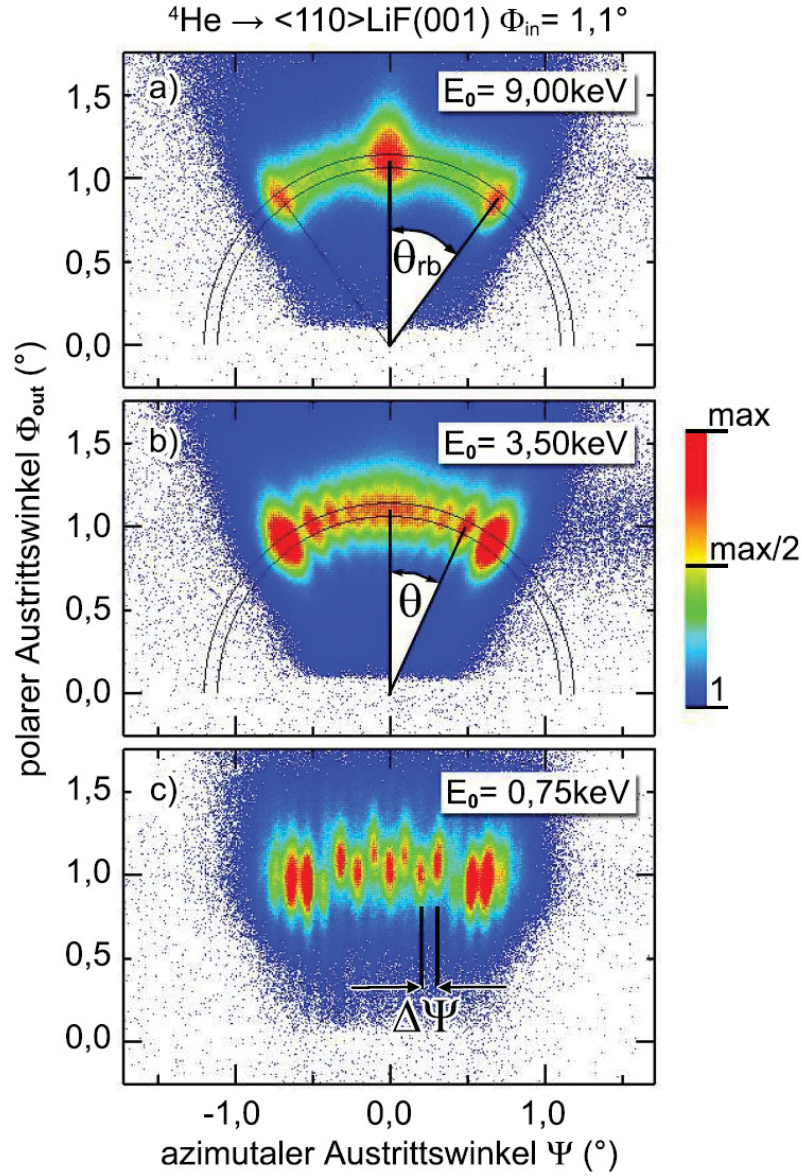


Abbildung 2.5: Intensitätsverteilungen bei Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen an einer  $\text{LiF}(001)$ -Fläche entlang der  $[110]$ -Richtung mit einer Projektilenergie von a)  $E = 9 \text{ keV}$ , b)  $E = 3.5 \text{ keV}$  und c)  $E = 0.75 \text{ keV}$  unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 1.1^\circ$ . Gezeigt ist der Übergang von Beugungseffekten in c), bis hin zu einer klassischen Intensitätsverteilung in a). (Abbildung entnommen aus [23])

$$A(\Theta) = \sum_i \sqrt{\sigma_i(\Theta_i)} \quad (2.6)$$

Die Streuamplitude ist also die Summe der Wahrscheinlichkeiten (Wurzel des differentiellen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_i$ ), dass die Projektilen in den jeweiligen möglichen Ablenkungswinkeln  $\Theta_i$  gestreut werden. Die Summe läuft dabei über alle möglichen Ablenkungswinkel. Für den differentiellen Wirkungsquerschnitt gilt  $\sigma = |\text{d}\Theta(y)/\text{d}y|^{-1}$ , wodurch sich für die Intensitätsverteilung die Formel [17, 18, 26, 27]

$$I \sim \left| \frac{d\Theta(y)}{dy} \right|^{-1} \quad (2.7)$$

ergibt. Für eine sinusförmige harte Wand lautet die Intensitätsverteilung damit [18, 19, 23, 28]

$$I(\Theta) \sim \frac{1 + \tan^2\left(\frac{\Theta}{2}\right)}{2\pi \sqrt{\left(\frac{\pi}{d} \zeta_{max}\right)^2 - \tan^2\left(\frac{\Theta}{2}\right)}} \quad (2.8)$$

Für den Fall  $\Theta = \Theta_{RB}$  ergibt sich eine Singularität für  $\sigma$  und somit für die Intensität. Im Experiment wird eine Intensitätsüberhöhung beobachtet, jedoch ist sie im Experiment endlich und auch in den klassisch verbotenen Bereich  $|\Theta| > \Theta_{RB}$  ausgedehnt. Dies lässt sich in einer quantenmechanischen Behandlung des Problems erklären.

Bisher wurden die Trajektorien einer Einheitszelle beschrieben. Was dabei bisher keine Rolle spielte, war die Unterscheidbarkeit von Trajektorien mit unterschiedlichem Stoßparameter, jedoch gleichem Ablenkwinkel. Im Experiment beobachtet man bei hinreichend kleinen Energien Intensitätsmodulationen, die mit dem bisherigen Modell nicht erklärbar sind. Erst die Behandlung der Projektile als Materiewellen in einer semi-klassischen Theorie liefert Aufschluss über die Ursachen hierfür. Das Phänomen wird in der Literatur als *Beugung* bezeichnet [23]. Die Beugung schneller Atome unter streifendem Einfall wurde erstmals in unserer Arbeitsgruppe von A. Schüller [23, 29] und unabhängig davon in der Arbeitsgruppe von P. Rocin [30] beobachtet. Seitdem wurden Beugungsmessungen an vielen Systemen, wie zum Beispiel Metall- [9, 31–34], Halbleiter- [35, 36] und Isolatoroberflächen [29, 30, 37–43] sowie an Adsorbatschichten und dünnen Filmen [44–50] durchgeführt. In Abbildung 2.5 ist der Übergang von der klassischen Streuung zur Beugung für die Streuung von  $^4\text{He}$ -Projektilen an der  $\text{LiF}(001)$ -Fläche entlang der  $[110]$ -Richtung mit einem gleich bleibenden Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 1.1^\circ$  gezeigt (Messungen aus [23]). Abbildung 2.5 a) zeigt die Streuung mit  $^4\text{He}$ -Projektilen mit einer Energie von  $E = 9$  keV, die eine klassische Intensitätsverteilung zeigt. Gut zu erkennen ist die Intensitätserhöhung am Regenbogenwinkel. Die Verteilung ist kontinuierlich. Verringert man die Energie wie in Abbildung 2.5 b) auf  $E = 3.5$  keV, so erkennt man eine Modulation der Intensität im Bereich  $0 \leq |\Theta| \leq \Theta_{RB}$  mit mehreren breiten Maxima. Dies entspricht dem Übergang von einer klassischen Intensitätsverteilung zu dem Auftreten von überzähligen Regenbögen. Die Modulation entsteht durch die Interferenz von Pfaden innerhalb einer Einheitszelle, die bei unterschiedlichem Stoßparametern den selben Ablenkwinkel  $\Theta$  besitzen. Verringert man die Energie weiter wie in Abbildung 2.5 c) auf  $E = 0.75$  keV, so erkennt man, dass die breiten Maxima in jeweils mehrere schmale Maxima aufspalten. Dieser Effekt wird als Beugung bezeichnet. Die zusätzliche Modulation entsteht dadurch, dass die Pfade einer Einheitszelle mit den Pfaden der benachbarten Einheitszellen interferieren. Die so entstehende Bedingung für Interferenz lässt sich auf die wohl-bekannte Bragg-Bedingung zurückführen.

Typische Abstände von Beugungslinien liegen im Bereich von wenigen Zehntel Grad. Die Voraussetzung zur Beobachtung von Beugungseffekten ist also ein entsprechend gut fokussierter Projektilstrahl mit einer entsprechend hohen Auflösung der Detektoren. Die Breite der Reflexe wird im Abschnitt „Linienbreiten“ näher diskutiert



werden. Die beschriebenen Beobachtungen werden in dem folgenden Abschnitt durch die Anwendung einer semi-klassischen Theorie erklärt werden.

## 2.2 Semi-Klassische Näherung

Um die am Ende des letzten Abschnitts angesprochenen Beugungs-Phänomene zu beschreiben, muss die Quantenmechanik in die Betrachtung des Streuprozesses mit einbezogen werden. Genauer müssen die Projektile unter dem Gesichtspunkt des Welle-Teilchen-Dualismus betrachtet werden, wodurch jedes Projektil durch eine Wellenfunktion mit der Phase  $\phi_i$  beschrieben wird. Entscheidend für die Phase ist die de-Broglie Wellenlänge, für die gilt

$$\lambda_{dB} = \frac{h}{\sqrt{2 \cdot m \cdot E}} \quad (2.9)$$

mit dem Planck'schen Wirkungsquantum  $h$  sowie der Projektilmasse und -energie  $m$  und  $E$ . Die senkrechte Komponente der Wellenlänge  $\lambda_{dB\perp}$  ergibt sich zu

$$\lambda_{dB\perp} = \frac{h}{\sqrt{2 \cdot m \cdot E_{\perp}}} = \frac{\lambda_{dB}}{\sin(\Phi_{in})} \quad (2.10)$$

Überraschend war die Beobachtung von Beugungseffekten, da die typische de-Broglie Wellenlänge mit zwei bis drei Größenordnungen wesentlich kleiner als die atomaren Abstände der untersuchten Oberflächen ist.

Es gibt immer mindestens zwei Stoßparameter, die zum selben Ablenkwinkel  $\Theta$  führen (Trajektorien  $A$  und  $B$  in Abbildung 2.6). Es muss nun die Phasenbeziehung der jeweiligen Pfade zueinander berücksichtigt werden, sodass in Abhängigkeit vom Ablenkwinkel konstruktive oder destruktive Interferenzen auftreten können. Die Gleichung für die Streuamplitude ist um einen Phasenfaktor zu erweitern. Gleichung (2.6) lautet dann [26, 27]

$$A(\Theta) = \sum_i \sqrt{\sigma_i(\Theta_i)} \cdot e^{i\phi_i} \quad (2.11)$$

Man gehe nun zunächst davon aus, dass es nur zwei Pfade  $A$  und  $B$  gebe, die zu dem selben Ablenkwinkel führen. (2.11) vereinfacht sich dann zu

$$A(\Theta) = \sqrt{\sigma_A} \exp(i\phi_A) + \sqrt{\sigma_B} \exp(i\phi_B) \quad (2.12)$$

Für die Intensität gilt wie im Abschnitt zuvor  $I \sim |A(\Theta)|^2$ , also

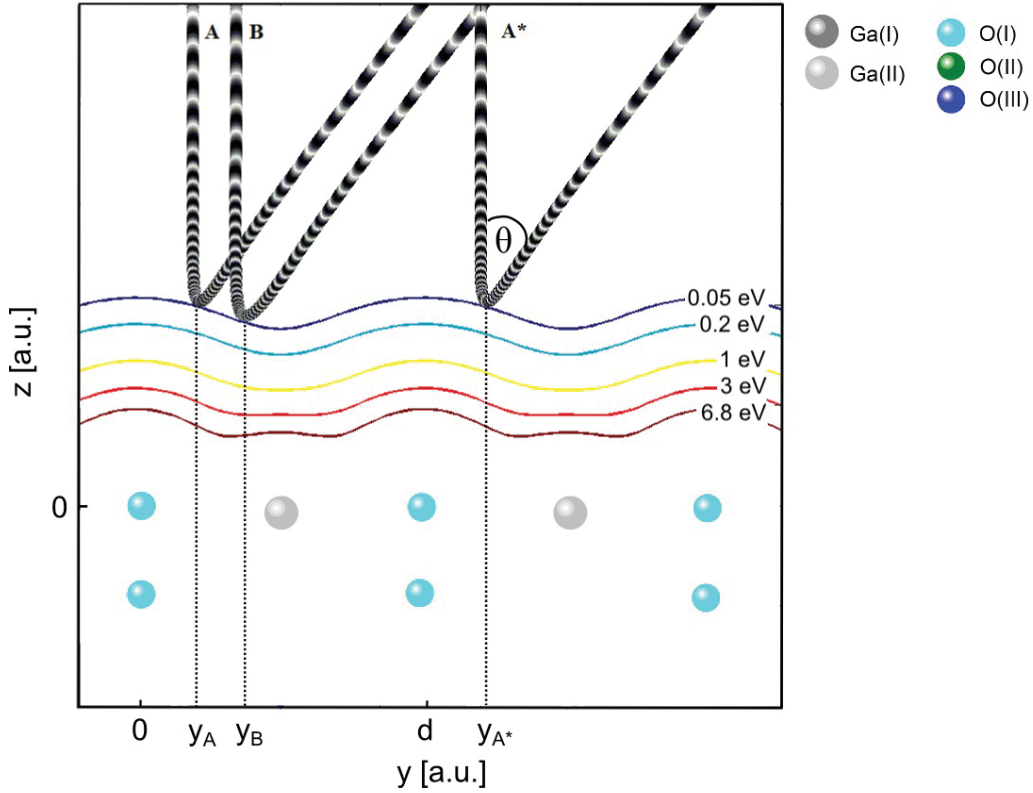


Abbildung 2.6: Darstellung der Pfade  $A$  und  $B$  innerhalb der selben, sowie Trajektorie  $A^*$  in einer benachbarten Einheitszelle eines  $He$ -Projektils mit einer Energie von  $E = 500$  eV bei der Streuung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.5^\circ$  an der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche entlang der  $[010]$ -Richtung mit jeweils dem selben Ablenkwinkel  $\Theta$  in der  $y$ - $z$ -Ebene. Dargestellt und farblich markiert sind die Äquipotentiallinien des Wechselwirkungspotentials (Hartree-Fock-Potential) für verschiedene Energien. Angedeutet ist die für die Behandlung des Streuprozesses in semi-klassischer Näherung entscheidende Phase des Projektils entlang der jeweiligen Pfade.

$$\begin{aligned}
 I &\sim |\sqrt{\sigma_A} \exp(i\phi_A) + \sqrt{\sigma_B} \exp(i\phi_B)| \\
 &\sim \sigma_A + \sigma_B + 2\sqrt{\sigma_A}\sqrt{\sigma_B} \cos(\Delta\phi)
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

wobei  $\Delta\phi = \phi_B - \phi_A$  die Phasendifferenz zwischen den beiden Pfaden ist. Man kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit davon ausgehen, dass beide Pfade gleich wahrscheinlich sind. Damit gilt  $\sigma_A = \sigma_B = \frac{\sigma}{2}$  und Gleichung (2.13) vereinfacht sich zu

$$\begin{aligned}
 I &\sim \sigma (1 + \cos(\Delta\phi)) \\
 &\sim 2\sigma \cos^2\left(\frac{\Delta\phi}{2}\right)
 \end{aligned} \tag{2.14}$$

Für die Phase eines Projektils gilt [26]

$$\phi_i = \int_i k(s) ds - \eta \cdot \frac{\pi}{2} \quad (2.15)$$

Hierbei stellt  $s$  den Weg des Projektils dar.  $k$  bezeichnet den Wellenvektor des Projektils. Die Abhängigkeit vom Weg entsteht dadurch, dass sich die Geschwindigkeit und somit Energie des Projektils aufgrund der Wechselwirkung mit dem Potential ändern kann. Weiterhin stellt  $\eta$  den Maslov-Index dar. Für ein zweidimensionales Potential ist er  $\eta = 1$  für Trajektorien, die einen Punktfokus von Trajektorien durchlaufen bzw. an einem konvexen Teil des Potentials gestreut werden, und  $\eta = 0$  sonst [14, 23, 51, 52]. Anschaulich gibt der Maslov-Index die Anzahl der Kreuzungspunkte der Trajektorien mit leicht unterschiedlichem Stoßparameter an [23, 51]. In der Optik analog beobachtet und als Gouy-Phasenverschiebung bezeichnet, liegt die Ursache in einer räumlichen Einschränkung der sich in  $z$ -Richtung bewegenden Photonen. Über die Heisenberg'sche Unschärferelation erhält man zum Wellenvektor  $\vec{k} = k \cdot \vec{e}_z$  senkrechte Komponenten  $k_x$  und  $k_y$ . Die relativen Erwartungswerte von  $k_x$  und  $k_y$  verursachen die Phasenverschiebung der Photonen [51]. Die Phasenverschiebung lässt sich ebenfalls auf atomare Wellen übertragen [52]. Im Falle des Durchlaufens eines Fokusses, hat der Strahl am Fokus selbst seine geringste Ausdehnung. Senkrecht zur Ausbreitungsrichtung ist der Strahl demnach eingeschränkt, sodass sich der Anteil der senkrechten Komponenten des Wellenvektors erhöhen [53]. Die Form des durch die Mittelung entlang der Streurichtung zweidimensionalen Potentials entspricht einer Zylinderlinse, bzw. der Fokus entspricht einem Linienfokus, wodurch die Phasenverschiebung bei der streifenden Streuung für das Durchlaufen eines Fokusses  $\frac{\pi}{2}$  beträgt [14, 52].

In Harter-Wand Näherung gilt

$$k(s) = \frac{2\pi}{\lambda_{dB\perp}} \quad (2.16)$$

Der Wellenvektor ist in dieser Näherung also wegunabhängig und man findet für die Phasendifferenz im obigen Fall durch Einsetzen

$$\begin{aligned} \Delta\phi &= \frac{2\pi}{\lambda_{dB\perp}} \cdot \left( \int_B ds_B - \int_A ds_A \right) - \frac{\pi}{2} \\ &= 2\pi \cdot \left( \frac{\Delta s}{\lambda_{dB\perp}} - \frac{1}{4} \right) \end{aligned} \quad (2.17)$$

Entscheidend für die Phasendifferenz ist also die Differenz der Weglängen. Nach Gleichung (2.14) kommt es immer genau dann zu einer konstruktiven Interferenz, wenn die Phasendifferenz ein gerades Vielfaches von  $\pi$  ist, es also gilt

$$\Delta\phi_{\text{konstruktiv}} = 2m\pi$$

Zu einer destruktiven Interferenz kommt es demnach also genau dann, wenn die Phasendifferenz ein ungerades Vielfaches von  $\pi$  ist, also

$$\Delta\phi_{\text{destruktiv}} = (2m - 1)\pi$$



Dabei ist  $m$  jeweils eine natürliche Zahl. Das Phänomen der Modulation der klassischen Intensität wird in der Literatur als *überzählige Regenbögen* („*supernumerary rainbows*“) bezeichnet. Die Bezeichnung basiert auf der analogen Beschreibung des atmosphärischen Regenbogens [23]. Der Wert  $m = 0$  entspricht dabei dem Regenbogen. Die Werte  $m \geq 1$  entsprechen den überzähligen Regenbögen. Der semi-klassische Regenbogen fällt nicht genau mit dem klassischen Regenbogen zusammen, da die Phasenverschiebung  $\frac{\pi}{2}$  über den Maslov-Index zu berücksichtigen ist. Der Regenbogen ist somit zu kleineren Winkeln hin verschoben (siehe auch Abbildung 2.7). Über geometrische Überlegungen, erhält man für die Wegdifferenz in (2.17) die Beziehung

$$\begin{aligned} \Delta s(\Theta) &= 2\varsigma(y_A) \cdot \left(1 + \frac{1}{\cos(\Theta)}\right) - \\ &- \left(\frac{d}{2} - 2y_A + 2\varsigma(y_A) \cdot \tan(|\Theta|)\right) \cdot \sin(|\Theta|) \end{aligned} \quad (2.18)$$

Die einzige unbekannte Größe in (2.18) ist der Stoßparameter  $y_A$ . Diesen erhält man jedoch einfach durch Umstellen der Gleichung (2.3). Man findet

$$y_A = \frac{d}{2\pi} \arcsin\left(\frac{d}{\pi\varsigma_{max}} \tan\left(\frac{\Theta}{2}\right)\right) \quad (2.19)$$

Durch Einsetzen ist die Korrugation an der Stelle  $y_A$  somit zu berechnen nach

$$\begin{aligned} \varsigma(y_A) &= \frac{1}{2}\varsigma_{max} \cos\left(\frac{2\pi}{d} \cdot \frac{d}{2\pi} \arcsin\left(\frac{d}{\pi\varsigma_{max}} \tan\left(\frac{\Theta}{2}\right)\right)\right) \\ &= \frac{1}{2}\varsigma_{max} \cdot \sqrt{1 - \left(\frac{d}{\pi\varsigma_{max}}\right)^2 \tan^2\left(\frac{\Theta}{2}\right)} \end{aligned} \quad (2.20)$$

Mit den Gleichungen (2.19), (2.20) und (2.18), bzw. in (2.17) lassen sich die vom Ablenkwinkel abhängigen Weg- und Phasenunterschiede ermitteln. Damit lässt sich dann die Intensität (2.14) für den semiklassischen Fall berechnen.

Hier wurde nun der Fall zweier Pfade innerhalb einer Einheitszelle mit dem selben Ablenkwinkel diskutiert. Für eine vollständige Beschreibung müssen jedoch die entsprechenden Pfade in benachbarten Einheitszellen ebenfalls betrachtet werden. Durch die Phasenbeziehung zueinander, kommt es zu weiteren Zwangsbedingungen für die Interferenz. Für einen allgemeinen Ansatz muss die Symmetriebreite  $d$  in die Phase eingehen. Dazu betrachte man sich die Gleichung (2.11) und erweitere diese zu [14]

$$A = \sum_j \sum_l \sqrt{\sigma_j} \exp\left(i\left(\phi_j - \eta_j \frac{\pi}{2} + 2\pi l \frac{d}{\lambda_{dB}} \sin(\Psi)\right)\right) \quad (2.21)$$

$$= |S| \cdot |F| \quad (2.22)$$

mit dem Strukturfaktor  $S$  und dem Gitterfaktor  $F$ . Die Summe über  $l$  läuft über alle berücksichtigten Einheitszellen.  $|S|^2$  stellt dann die semiklassische Lösung für die überzähligen Regenbögen dar. Der Faktor  $|F|^2$  stellt die Zwangsbedingung für

die Beugung dar. Für  $N$  Einheitszellen findet man, dass sich die Streuung ähnlich wie die Streuung am Mehrfachspalt verhält, sodass für  $|F|^2$  folgt [14, 54, 55]

$$|F|^2 = \frac{\sin^2 \left( N \cdot \pi \cdot \frac{d}{\lambda_{dB}} \sin(\Psi) \right)}{\sin^2 \left( \pi \cdot \frac{d}{\lambda_{dB}} \sin(\Psi) \right)} \quad (2.23)$$

Diese aus der Optik bekannte Funktion besitzt  $N$  viele Maxima und zwischen den Maxima  $(N - 2)$  viele Nebenmaxima, mit einem Intensitätsverhältnis zwischen Maxima und Nebenmaxima von  $N^2$  [55]. Die Breite der Maxima ist von  $N$  bestimmt. Der Strukturfaktor lässt sich dabei analog zur Optik beschreiben mit [54, 55]

$$|S|^2 = \frac{\sin^2 \left( \frac{d\pi}{\lambda_{dB} \sin(\Psi)} \right)}{\left( \frac{d\pi}{\lambda_{dB} \sin(\Psi)} \right)^2} \quad (2.24)$$

was der Beugung am Einfachspalt entspricht.

Für eine einfache Anschauung berechnet man den Wegunterschied zwischen den Pfaden  $A$  und  $A^*$  in Abbildung 2.6. Dieser ergibt sich zu

$$\overline{\Delta s} = d \cdot \sin(\Theta) \quad (2.25)$$

Für die konstruktive Interferenz muss der Wegunterschied einem ganzzahligen Vielfachen der Wellenlänge entsprechen, wobei hier die senkrechte Komponente der Wellenlänge zu betrachten ist. Folglich ergibt sich

$$\sin(\Theta_n) = n \frac{\lambda_{dB\perp}}{d} \quad (2.26)$$

wobei  $n$  eine ganze Zahl ist. Gleichung (2.26) entspricht der Bragg-Bedingung zur Beugung an einer Blende aus äquidistanten Spalten gleicher Breite. Nur bei den Ablenkungswinkeln  $\Theta_n$  kommt es zur konstruktiven Interferenz der Pfade, sodass nur bei diesen Winkeln Intensitäten verschieden von Null auftreten können. Die Intensität der überzähligen Regenbögen nach Gleichung (2.14) bestimmt dabei die Intensität der jeweiligen Bragg-Reflexe. Für die weitere Betrachtung ist es durchaus von Interesse die Projektion des Ablenkungswinkels in die Oberflächenebene (entspricht dem Winkel  $\Psi$  in Abbildung 2.3) zu betrachten. Über geometrische Betrachtungen findet man die Beziehung

$$\begin{aligned} \tan(\Theta) &= \frac{\tan(\Psi)}{\tan(\Phi_{in})} \\ &\approx \frac{\sin(\Psi)}{\sin(\Phi_{in})} \end{aligned} \quad (2.27)$$

Hier wurde einerseits  $\Phi_{in} = \Phi_{out}$  (bei elastischer Streuung), andererseits  $\Psi, \Phi \leq 2^\circ$  ausgenutzt. Die Bragg-Beziehung (2.26) lässt sich somit modifizieren, zu

$$\sin(\Psi_n) = n \frac{\lambda_{dB}}{d} \quad (2.28)$$

Über die Kleinstwinkelnäherung, kann man den Abstand benachbarter Beugungsordnungen  $\Delta\Psi = \Psi_{n+1} - \Psi_n$  mit der Gleichung

$$\Delta\Psi = \frac{\lambda_{dB}}{d} \quad (2.29)$$

ausdrücken. Man erlangt durch die Auswertung der Abstände benachbarter Beugungslinien also einen einfachen Zugriff auf die Symmetriebreite der Einheitszelle der zu untersuchenden Oberfläche. Die Abstände der Beugungslinien enthalten jedoch zunächst bis auf die Symmetriebreite keinerlei Informationen über die Atom- oder Ionenpositionen innerhalb der Einheitszelle.

Einen Ausdruck für die Intensitäten der Beugungslinien findet man über längliche Rechnungen. Der Stoßparameter ist nach Gleichung (2.19) zu berechnen. Für den Ablenkwinkel der  $n$ -ten Bragg-Ordnung gilt nach (2.26)

$$\Theta_n = \arcsin\left(n \frac{\lambda_{dB\perp}}{d}\right) \quad (2.30)$$

Ferner kann man aus trigonometrischen Beziehungen herleiten

$$\begin{aligned} \tan\left(\frac{\Theta_n}{2}\right) &= \frac{\sin(\Theta_n)}{1 + \cos(\Theta_n)} \\ &= \sqrt{\frac{2}{1 + \cos(\Theta_n)}} - 1 \end{aligned} \quad (2.31)$$

Der Stoßparameter ergibt sich dann durch Einsetzen zu

$$y_n = \frac{d}{2\pi} \arcsin\left(\frac{d}{\pi\varsigma_{max}} \sqrt{\frac{2}{1 + \cos(\Theta_n)}} - 1\right) \quad (2.32)$$

Die Korrugation an dieser Stelle ist damit

$$\varsigma(y_n) = \frac{d}{2\pi} \sqrt{1 + \left(\frac{\pi\varsigma_{max}}{d}\right)^2 - \frac{2}{1 + \cos(\Theta_n)}} \quad (2.33)$$

wodurch sich der Wegunterschied der Trajektorien zu

$$\begin{aligned} \Delta s_n &= \frac{d}{\pi} \sqrt{1 + \left(\frac{\pi\varsigma_{max}}{d}\right)^2 - \frac{2}{1 + \cos(\Theta_n)}} \cdot \left(1 + \frac{1}{\cos(\Theta_n)} \cdot \left(1 - \left(\frac{n\lambda_{dB\perp}}{d}\right)^2\right)\right) \\ &- \left(\frac{1}{2} - \frac{1}{\pi} \arcsin\left(\frac{d}{\pi\varsigma_{max}} \sqrt{\frac{2}{1 + \cos(\Theta_n)}} - 1\right)\right) \cdot |n| \lambda_{dB\perp} \end{aligned} \quad (2.34)$$

ergibt. Dabei errechnet sich  $\cos(\Theta_n)$  einfach aus der Beziehung (2.26) zu

$$\cos(\Theta_n) = \sqrt{1 - \left(n \frac{\lambda_{dB\perp}}{d}\right)^2}$$

Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_n = \sigma(\Theta_n)$  lässt sich über die Ableitung des Stoßparameters nach dem Ablenkungswinkel berechnen, und man findet so für die Intensität unter Berücksichtigung von  $I_n \sim \sigma_n$  den Ausdruck

$$I_n \sim \frac{d}{4\pi} \frac{1 + \tan^2\left(\frac{\Theta_n}{2}\right)}{\sqrt{\left(\frac{\pi \varsigma_{max}}{d}\right)^2 - \tan^2\left(\frac{\Theta_n}{2}\right)}}$$

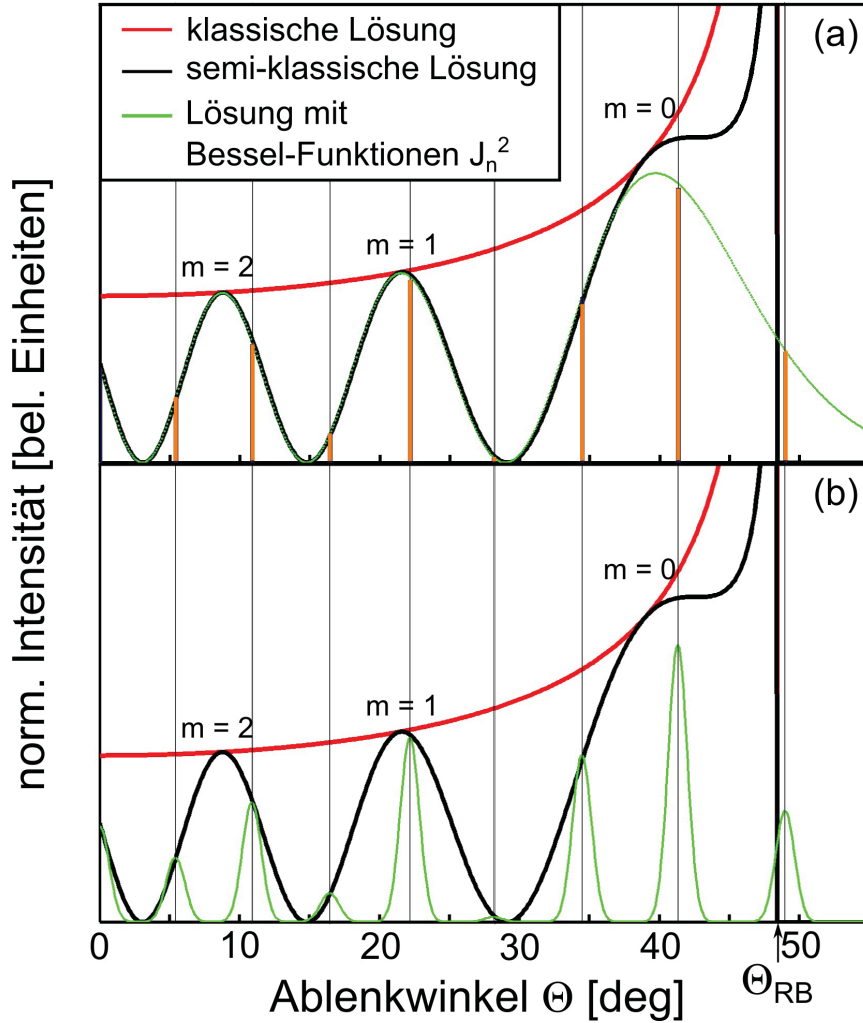


Abbildung 2.7: Vergleich zwischen den Intensitätsverläufen für die klassische (rote Kurve), die semi-klassische (schwarze Kurve) und die Lösung auf Basis der Besselfunktionen nach *Garibaldi et al.* (grüne, gepunktete Kurve) in Harter-Wand-Näherung für die Streuung von  $^4\text{He}$ -Projektilen mit einer Energie von  $E = 1200$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.9^\circ$  entlang der Oberflächenrichtung einer fiktiven Fläche mit der Symmetriebreite  $d = 2.8$  Å und einer Korrugation von  $\varsigma_{max} = 0.4$  Å. (a) zeigt einen kontinuierlichen Verlauf der Intensitäten für die Lösung auf Basis der Besselfunktionen. (b) zeigt den korrekten Verlauf für die Anwendung der Beschreibung auf Basis der Bessel-Funktionen (Details siehe Text).

Mit (2.31) kann man diese Gleichung weiter umformen und erhält dann letzten Endes

$$I_n \sim \frac{d}{2\pi} \frac{1}{1 + \cos(\Theta_n)} \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\pi \varsigma_{max}}{d}}} \quad (2.35)$$

Vergleicht man diese Lösung mit der klassischen Lösung (2.8), so kann man den Proportionalitätsfaktor mit  $(1 + \cos(\Delta\Phi))$  angeben, und Gleichung (2.35) modifiziert sich unter Ausnutzung von (2.17) zu

$$I_n \sim \frac{d}{2\pi} \frac{1}{1 + \cos(\Theta_n)} \frac{1 + \cos\left(2\pi\left(\frac{\Delta s}{\lambda_{dB\perp}} - \frac{1}{4}\right)\right)}{\sqrt{1 + \frac{\pi \varsigma_{max}}{d}}} \quad (2.36)$$

Die semi-klassische Lösung gilt nicht am Regenbogenwinkel. Die Behandlung der Pfade  $A$  und  $B$  als unabhängig ist in der Nähe des Regenbogenwinkels nicht mehr zulässig [27]. Ferner kann der Maslov-Index nicht mehr eindeutig zugeordnet werden. Als Lösung wird in [27] die Airy-Näherung vorgeschlagen. Die Ablenkfunktion wird zunächst in der Nähe des Regenbogenwinkels als Parabel  $\Theta\left((y - b_{RB})^2\right)$  angenähert, wobei  $\Theta(b_{RB}) = \Theta_{RB}$  ist. Die Intensität ist dann proportional zum Quadrat der Airy-Funktion  $Ai(y)$ . Dieser Ansatz behebt den Widerspruch, dass es im klassisch verbotenen Bereich zu Intensitäten verschieden von Null kommt sowie dass die Intensitätsüberhöhung am Regenbogenwinkel endlich ist.

Die so beschriebene Intensität ist praktisch eine Aneinanderkettung von zwei verschiedenen Lösungen, die in ihrem jeweiligen Winkelbereich Gültigkeit besitzen, den Intensitätsverlauf jedoch nicht in Gänze darstellen können. Hier soll nun eine Lösung vorgestellt werden, die für den gesamten Bereich des Regenbogens gilt. *Garibaldi et al.* entwickelten eine uniforme, semi-klassische Näherung für die Streuintensitäten auf Basis von Besselfunktionen [56]. Auch hierbei wurde das Potential mit einer sinusförmigen harten Wand angenähert. Für Details zur Theorie sei auf das Kapitel „Aluminiumoxid - Erweiterung der Theorie auf 3D“ verwiesen. Hier soll zunächst nur für einen Vergleich die Lösung in zwei Dimensionen angegeben werden, die sich berechnet zu

$$I_n \sim J_n^2\left(\frac{\varsigma_{max}\pi}{\lambda_{dB\perp}}(1 + \cos(\Theta_n))\right) \quad (2.37)$$

mit den Variablen wie vorher deklariert und den Besselfunktionen  $J_n$  mit dem Index  $n$  der jeweiligen Beugungsordnung. Ein Vergleich der Intensitätsverläufe auf Basis der klassischen, der semi-klassischen und der Lösung auf Basis der Besselfunktionen nach *Garibaldi et al.* des Streuprozesses in Harter-Wand-Näherung ist in Abbildung 2.7 (rote, schwarze und grün, gepunktete Kurve) für die Streuung mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen mit der Energie  $E = 1200$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.9^\circ$  entlang einer Oberflächenrichtung einer fiktiven Fläche mit der Symmetriebreite  $d = 2.8$  Å und der Korrugation von  $\varsigma_{max} = 0.4$  Å gezeigt. Der klassische Intensitätsverlauf in Abbildung 2.7 (a) zeigt einen kontinuierlichen Verlauf mit einer monotonen Steigung der Intensität zu höheren Ablenkwinkeln  $\Theta$  hin, bis zur Singularität am Regenbogenwinkel. Die Intensität für  $\Theta > \Theta_{RB}$  ist Null. Die semi-klassische Intensität ist als kontinuierliche Funktion von  $\Theta$  dargestellt. Die Bragg-Bedingung wird zunächst ignoriert. Dann entspricht der Intensitätsverlauf dem der

überzähligen Regenbögen. Sie bilden eine einhüllende Funktion für die Intensitäten der Beugungsreflexe. Es ist zu erkennen, dass die semi-klassische Lösung und die Lösung auf Basis der Besselfunktionen für  $\Theta < \Theta_{RB}$  nahezu identisch sind. Die semi-klassische Lösung zeigt jedoch bei  $\Theta = \Theta_{RB}$  aufgrund der Proportionalität zur klassischen Intensität ebenfalls eine Singularität der Intensität. Der Intensitätsverlauf auf Basis der Besselfunktionen zeigt zumindest qualitativ das in den Experimenten beobachtete Abklingen der Intensität bis in den verbotenen Bereich  $\Theta > \Theta_{RB}$ . Die Gleichung (2.37) gilt streng eigentlich nur für feste Beugungsordnungen. Diese sind in Abbildung 2.7 (a) als orange Balken dargestellt. Für den kontinuierlichen Intensitätsverlauf wurde die Gleichung (2.30) umgeformt, um eine von  $\Theta$  abhängige kontinuierliche Funktion der Beugungsordnung zu erhalten.

$$n(\Theta) = \frac{d}{\lambda_{dB,\perp}} \sin(\Theta)$$

Die Verwendung von  $n(\Theta)$  ist möglich, da die Besselfunktion auch für nicht ganzzahlige Ordnungen definiert ist. Der Intensitätsverlauf entspricht dann aber nicht mehr der Beschreibung der Beugung, man betrachtet hierbei vielmehr den Intensitätsverlauf der überzähligen Regenbögen für die Lösung auf Basis der Besselfunktionen. Ein möglicher realer Intensitätsverlauf ist mit der grünen Kurve in Abbildung 2.7 (b) gezeigt. Für diesen Verlauf wurden die Bragg-Reflexe mit Gauss-Funktionen gefaltet, um die Verbreiterung der ansonsten  $\delta$ -förmigen Reflexe im Experiment zu berücksichtigen.

Formal behandelt, muss der elastische Streuprozess die Laue-Beziehung

$$\vec{k}_f - \vec{k}_i = \vec{g} \quad (2.38)$$

mit den Wellenvektoren  $\vec{k}_f = (K_f, k_{fz})$  und  $\vec{k}_i = (K_i, k_{iz})$  nach bzw. vor dem Streuprozess und dem reziproken Gittervektor  $\vec{g} = (G, g_z)$  erfüllen. Beugungsreflexe treten auf, wenn diese Bedingung erfüllt ist. Anschaulich lässt sich die Laue-Beziehung mit der Ewald-Konstruktion veranschaulichen (siehe Abbildung 2.8). Da der Kristall an der obersten Lage endet und nur die oberste Monolage auch am Streuprozess beteiligt ist, gibt es in  $z$ -Richtung keine Zwangsbedingung für die Streuung. Die reziproken Gitterpunkte werden demnach durch Stangen senkrecht zur Oberfläche repräsentiert. Die Laue-Bedingung reduziert sich dann zu

$$\vec{K} = \vec{G} \quad (2.39)$$

Die Differenz der Wellenvektorkomponenten in der  $x$ - $y$ -Ebene muss also der  $x$ - $y$ -Komponente eines reziproken Gittervektors entsprechen. Jeder Schnittpunkt einer der Stangen mit der Ewald-Kugel stellt einen Beugungsreflex dar. Die so entstehenden (Halb-)Kreise bezeichnet man als Laue-Kreise. Der in den Experimenten beobachtete Kreisbogen, entlang den die Projektile gestreut werden, stellt somit den Laue-Kreis nullter Ordnung dar. Durch die Mittelung des Potentials entlang der Streurichtung, hier die  $x$ -Richtung, ist die Korrugation entlang der Streurichtung Null. Beugungsreflexe mit  $G_x \neq 0$  haben somit eine vernachlässigbar kleine Intensität [16]. Laue-Kreise höherer Ordnungen sind also zwar prinzipiell möglich,

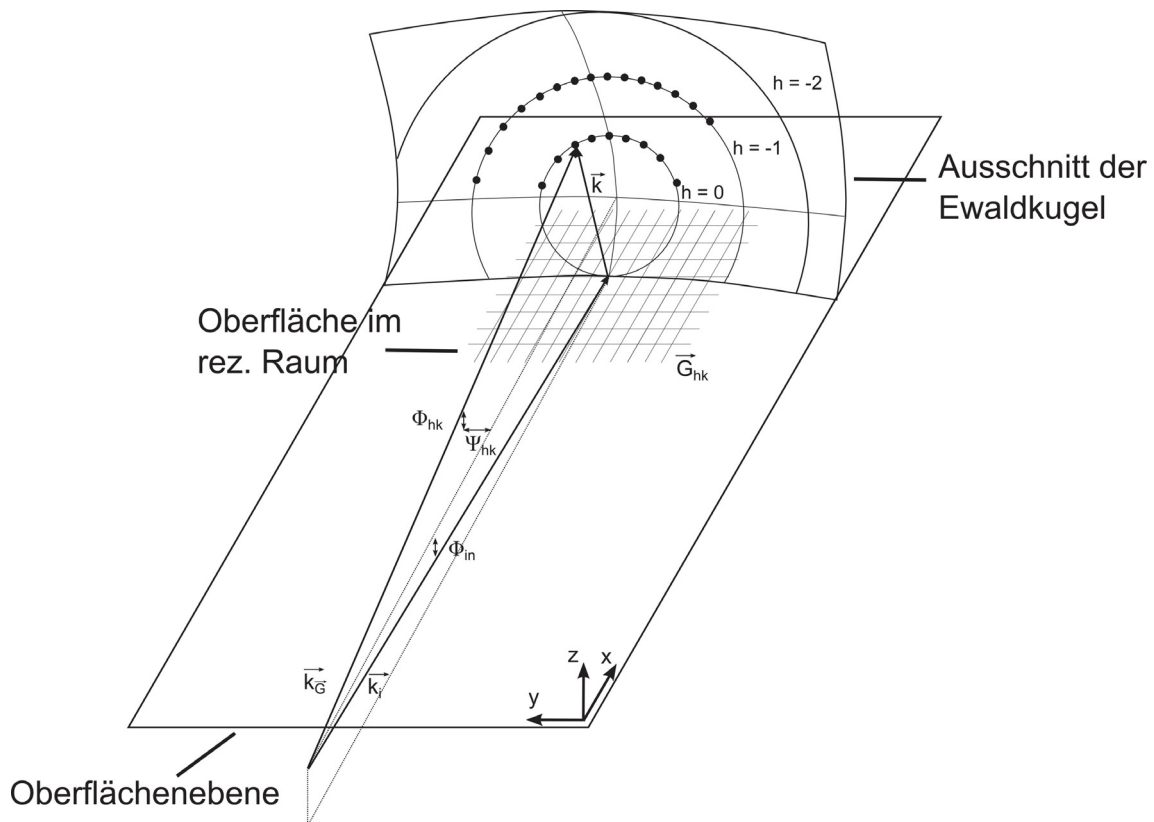


Abbildung 2.8: Veranschaulichung des Prinzips der Konstruktion der Beugungsreflexe mittels des Konzeptes der Ewaldkugel. Gezeigt sind ein Ausschnitt der Ewald-Kugel, gestreuter und einfallender Wellenvektor mit den jeweils für die Beschreibung der Streuung wichtigen Winkel  $\Phi$  und  $\Psi$  sowie eine willkürliche Kristalloberfläche im reziproken Raum. Der Wert  $h$  gibt die Ordnung des Laue-Kreises an (Details siehe Text).

werden aber in der Regel nicht im Experiment beobachtet (siehe Kapitel „Aluminiumoxid“).

Die bisherige Auswertung der Beugungsspektren beschränkte sich weitestgehend auf die Auswertung der Symmetriebreite der den Messungen zugrundeliegenden Oberfläche. Es wurden keinerlei Rückschlüsse auf die gesamte Oberflächenstruktur gezogen. Wie gezeigt wurde, moduliert die Intensität der Beugungsreflexe mit dem Einfallswinkel und der Energie. Das lässt sich durch die Abhängigkeit der Korrugation und damit der Phasenbeziehung der Trajektorien untereinander von der Senkrechterenergie erklären. Die Modulation hängt somit empfindlich von der Oberflächenstruktur des Kristalls ab. Es bietet sich daher an, dass die Messspektren in Abhängigkeit der senkrecht-de-Broglie Wellenlänge mit farbcodierten, normierten Intensitäten in „Beugungskarten“ dargestellt werden. Die Intensitäten der Messspektren werden dafür entlang eines Kreisbogens auf den Ablenkwinkel  $\Theta$  oder auf den azimuthalen Ablenkwinkel  $\Psi$  projiziert. Die so gewonnenen Intensitätsverteilungen werden für eine vergleichbare Darstellung jeweils auf Eins normiert. So lassen sich die Intensitätsverläufe der einzelnen Beugungsordnungen über den gesamten Messbereich für die senkrecht-de-Broglie Wellenlänge leicht und schnell nachvollziehen. Simulationen einer gesamten Beugungskarte stellen somit eine wesentlich stringenter Modellierung der Spektren als die Anpassung einzelner Spektren dar.



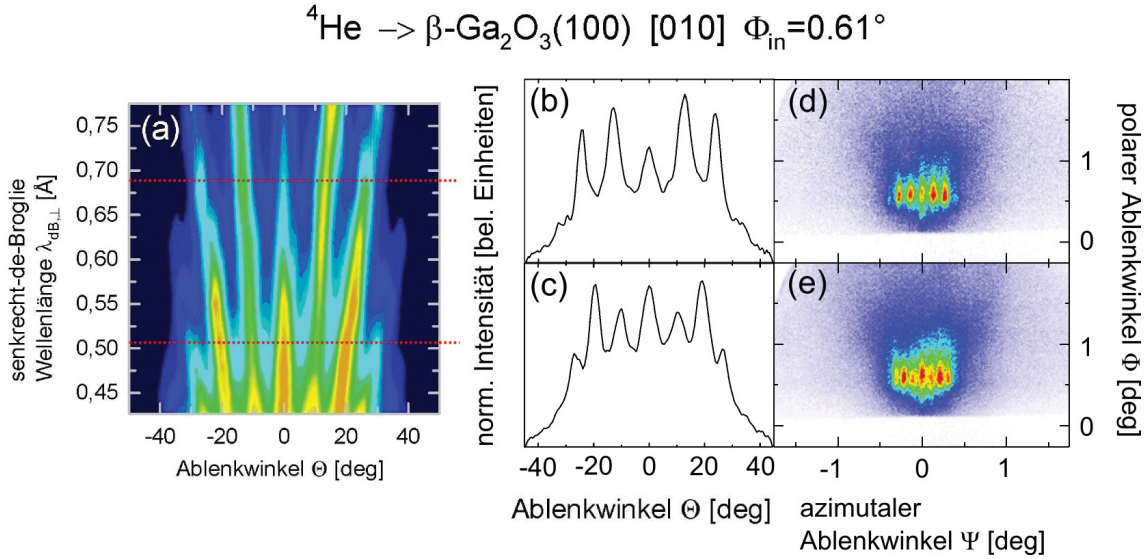


Abbildung 2.9: Veranschaulichung der Erstellung einer Beugungskarte. (a) Beispielbild für eine Beugungskarte für die Streuung mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[010]$ -Richtung der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche mit einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.61^\circ$ . (b)-(c) Projektionen von Beugungsmessungen, die in die Beugungskarte jeweils an den roten Markierungen eingefügt werden. Die Intensität muss dabei normiert sein. (d)-(e) Die zu den beiden Projektionen jeweils zugehörigen Messungen.

In Abbildung 2.9 ist ein Beispiel einer solchen Beugungskarte dargestellt. Dabei zeigt a) die vollständige Beugungskarte für die Streuung mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[010]$ -Richtung der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche mit einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.61^\circ$ . In den Abschnitten b) und c) sind exemplarisch zwei der die Beugungskarte bildenden Projektionen auf den Ablenkungswinkel  $\Theta$  der jeweiligen Messungen an den roten Markierungen in der Beugungskarte bei d)  $E = 400$  eV und e)  $E = 700$  eV verdeutlicht. Die weiteren Messungen werden den Messungen d) und e), bzw. den Projektionen b) und c), in einer Liste hinzugefügt und die Zwischenwerte interpoliert, um eine kontinuierliche Beugungskarte zu erstellen.

Ein Spezialfall ist ein Potential mit Bereichen unterschiedlicher Korrugation. In [14, 31] konnten die Messungen an der  $c(2 \times 4)$ - sowie der  $pg(2 \times 1)$ -Überstruktur einer Sauerstoffadsorbatschicht auf einer  $\text{Mo}(112)$ -Fläche mit der Beugung entlang der  $[10]$ -Oberflächenrichtung analog zum Doppelspaltexperiment von *T. Young* [57] erklärt werden. In Abbildung 2.10 ist eine Darstellung des Potentials gezeigt. Durch die Lage der Sauerstoffketten, werden die Bereiche unterschiedlicher Korrugation erzeugt. Das Potential wurde dann als Aneinanderreihung von Doppelspalten behandelt. Seien die Bereiche der unterschiedlichen Korrugationen jeweils  $d'$  und  $d - d'$  breit. Für den Bereich  $d - d'$  erfolgte die Beschreibung der Interferenz analog zu den bisherigen Überlegungen. Die Intensität in diesem Bereich ist  $I_{II} = |A_{d'-d}(\Theta)|^2 |F_d|^2$ . Im Bereich  $d'$  tritt hingegen eine zusätzliche Modulation auf, die im Folgenden hergeleitet werden soll. Die Intensität in diesem Bereich ist dann  $I_I = |A_{d'}(\Theta)|^2 |F_d|^2 |G_{d'}|^2$ . Die Gesamtintensität ist  $I = \alpha \cdot I_I + \beta \cdot I_{II}$ . Die Parameter  $\alpha$  und  $\beta$  wurden an das Experiment angepasst. Das Potential hat also zwei symmetrische Bereiche, wobei der eine Bereich eine geringe, der andere Bereich eine starke Korrugation besitzt. In [31] wurde gezeigt, dass sich die Beugung an ei-



nem Potential dieser Art prinzipiell wie die Beugung an einem Doppelspalt verhält. Man betrachte einen Doppelspalt und zwei Pfade am Punkt  $P$  in der Detektorebene. Diese Pfade werden durch die Wellenfunktionen

$$\begin{aligned}\Psi_1(\vec{r}, t) &= A_1 \cdot \exp\left(i\left(\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1 - \omega_1 \cdot t\right)\right) \\ \Psi_2(\vec{r}, t) &= A_2 \cdot \exp\left(i\left(\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2 - \omega_2 \cdot t\right)\right)\end{aligned}$$

beschrieben. Geht man davon aus, dass beide Pfade gleich wahrscheinlich sind, kann man die Wellenfunktionen weiter vereinfachen zu

$$\begin{aligned}\Psi_1(\vec{r}, t) &= A \cdot \exp\left(i\left(\vec{k} \cdot \vec{r}_1 - \omega \cdot t\right)\right) \\ \Psi_2(\vec{r}, t) &= A \cdot \exp\left(i\left(\vec{k} \cdot \vec{r}_2 - \omega \cdot t\right)\right)\end{aligned}$$

Man kann mit den obigen Voraussetzungen davon ausgehen, dass sich die Wellenfunktionen nur in einer Phase  $\delta$  unterscheiden. Es ist durch Vergleich klar ersichtlich, dass  $\delta = k(r_2 - r_1)$  ist. Aus geometrischen Überlegungen folgt  $\delta = d' \cdot \sin(\Theta)$ . Durch Vergleich gilt für  $\delta$

$$\delta = k \cdot d' \cdot \sin(\Theta)$$

Für die Gesamt-Wellenfunktion gilt  $\Psi = \Psi_1 + \Psi_2$ . Die Intensität berechnet sich zu  $I = |\Psi|^2$ , was bedeutet

$$\begin{aligned}I &= A \cdot A^* \cdot (2 + \exp(-i\delta) + \exp(i\delta)) \\ &= 2 \cdot A \cdot A^* \cdot (1 + \cos(\delta)) \\ &= 4 \cdot A \cdot A^* \cdot \cos^2\left(\frac{\delta}{2}\right)\end{aligned}\tag{2.40}$$

Ohne Beschränkung der Allgemeinheit soll hier angenommen werden, dass die Amplitude  $A$  reell ist, sodass sich die Intensität aus (2.40) ergibt zu

$$I = 4 \cdot A^2 \cdot \cos^2\left(\frac{\delta}{2}\right)\tag{2.41}$$

An dieser Stelle kann man nun die Bragg-Beziehung (2.26) bzw. (2.28) ausnutzen und erhält mit (2.9)

$$\begin{aligned}I &= 4 \cdot A^2 \cdot \cos^2\left(\frac{\pi \cdot d'}{h} \sqrt{2mE} \sin(\Psi)\right) \\ &= |G_{d'}|^2\end{aligned}\tag{2.42}$$

Wie in [31] gezeigt, berechnet sich die Gesamtintensität also zu

$$I = |S|^2 \cdot |F|^2 \cdot |G_{d'}|^2\tag{2.43}$$

Damit konnten die Messungen an dem System  $O/Mo(112)$  erfolgreich durch Simulationen unter Berücksichtigung dieser zusätzlichen Modulation erklärt und wiedergegeben werden.

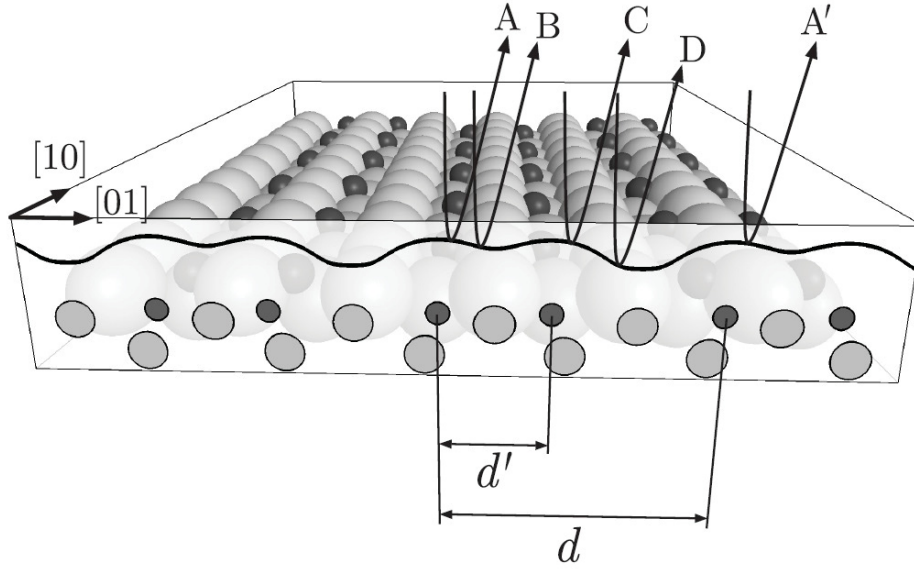


Abbildung 2.10: Darstellung der Oberflächenstruktur und des Wechselwirkungspotentials für die  $c(2 \times 4)$ -Überstruktur der  $Mo(112)$ -Fläche mit Blickrichtung entlang der Streurichtung  $[10]$  mit den Trajektorien  $A-D$ , die den selben Ablenkwinkel  $\Theta$  besitzen. Die Interferenz entspricht der Interferenz an einem Doppelspalt, der durch die Sauerstoffketten gebildet wird (Details siehe Text; Bild aus [14] entnommen)

## 2.3 Wechselwirkungspotentiale

Grundlage der Wechselwirkung zwischen einem Projektil und einer Oberfläche sowie die Grundlage einer Simulation zum Vergleich von Theorie und Experiment ist die Newton'sche Bewegungsgleichung des Projektils

$$M\ddot{\vec{r}} = -\nabla V_{WW} \quad (2.44)$$

Hierbei ist  $M$  die Projektilmasse,  $\vec{r}$  der Abstand und  $V_{WW}$  das Wechselwirkungspotential zwischen Projektil und Oberfläche, welches sich aus den individuellen Paar-Potentialen  $V_i(\vec{r}_i)$  zwischen dem Projektil und den Oberflächenatomen mit dem jeweils gegenseitigen Abstand  $\vec{r}_i$  ergibt. Das Wechselwirkungspotential ist dann die Summe der individuellen Paar-Potentiale über alle Oberflächenatome  $i$ .

$$V_{WW} = \sum_i V_i(\vec{r}_i) \quad (2.45)$$

Eine sinusförmigen harte Wand ist vor allem dann weniger für eine Beschreibung des Streuprozesses geeignet, wenn ein großer Bereich an Projektilenergien betrachtet wird. Auch die Weichheit des Potentials, und somit die Geschwindigkeitsänderung bei der Wechselwirkung mit der Oberfläche, wird in Harter-Wand Näherung vernachlässigt. Das Potential ist in der Mehrzahl der Systeme nicht bekannt bzw. nicht analytisch zu berechnen und muss somit genähert werden. Einen einfachen Ansatz

stellt das universelle Paar-Potential nach *D. J. O'Connor* und *J. P. Biersack* dar. Ausgangspunkt für dieses Potential ist das abgeschirmte Coulomb-Potential <sup>1</sup>

$$V(\vec{r}) = \frac{Z_1 Z_2}{r} \cdot f\left(\frac{r}{a}\right) \quad (2.46)$$

mit der Abschirmfunktion  $f\left(\frac{r}{a}\right)$  [15, 21, 22, 58–60]. Hierbei stellt  $a$  eine charakteristische Abschirmlänge dar.  $Z_1$  und  $Z_2$  sind die Kernladungszahlen des Projektils bzw. des Oberflächenatoms. Das Coulomb-Potential gilt im großen Abstand zwischen dem Projektil und einem Atom/Ion in guter Näherung. Bei kleiner werdendem Abstand und Durchdringung der Elektronenhüllen sind die Kernladungen jedoch nicht mehr vollständig durch die Elektronenhülle abgeschirmt. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen, wird das Konzept der Abschirmfunktion angewandt [23]. Für die Abschirmfunktion gibt es keine analytische Herleitung oder Begründung [21], sodass nur numerische Formen angegeben werden können. Es muss jedoch  $f\left(\frac{r}{a} \rightarrow 0\right) \rightarrow 1$  und  $f\left(\frac{r}{a} \rightarrow \infty\right) \rightarrow 0$  gelten. In dieser Arbeit wurde der Ansatz nach *G. Moliere* gewählt

$$f\left(\frac{r}{a}\right) = \sum_{i=1}^3 a_i \cdot \exp\left(-b_i \frac{r}{a}\right) \quad (2.47)$$

mit den Parametern  $\{a_i\} = \{0.1, 0.55, 0.35\}$  und  $\{b_i\} = \{6.0, 1.2, 0.3\}$  [58]. Die Abschirmlänge wurde in diesem Modell aus der Thomas-Fermi-Theorie berechnet [21]

$$\begin{aligned} a &= \left(\frac{9\pi^2}{128}\right)^{\frac{1}{3}} Z^{-\frac{1}{3}} \frac{\hbar^2}{m_e e^2} \\ &= 0.8853 \cdot a_0 \cdot Z^{-\frac{1}{3}} \end{aligned}$$

mit der Elektronenmasse  $m_e$ , der Elementarladung  $e$ , der Kernladungszahl  $Z$  und dem modifizierten Planck'schen Wirkungsquantum  $\hbar$ . *O. B. Firsov* erweiterte die Abschirmlänge für die Wechselwirkung zweier Atome mit Kernladungszahl  $Z_1$  und  $Z_2$  [21, 61]

$$a_F = 0.8853 \cdot a_0 \cdot \left(\sqrt{Z_1} + \sqrt{Z_2}\right)^{-\frac{2}{3}} \quad (2.48)$$

Zur Verbesserung der Übereinstimmung mit experimentellen Daten, wurde die Abschirmlänge von *D. J. O'Connor* und *J. P. Biersack* weiter modifiziert, indem sie experimentell bestimmte Paar-Potentiale mit dem Ansatz nach *G. Moliere* verglichen, wodurch die Abschirmlänge sich als [60]

$$a = \left(0.0045 \cdot \left(\sqrt{Z_1} + \sqrt{Z_2}\right) + 0.54\right) \cdot a_F \quad (2.49)$$

<sup>1</sup>Alle Formeln, sofern nicht anders deklariert, sind in atomaren Einheiten gegeben.

darstellt. Im Folgenden soll das Coulomb-Potential mit der Abschirmfunktion nach *G. Moliere* und der Abschirmlänge nach *D. J. O'Connor* und *J. P. Biersack* als „OCB-Potential“ bezeichnet werden.

Für die Mittelung des Potentials entlang der Streurichtung geht man davon aus, dass das Projektil mit einem so flachen Einfallswinkel an der Oberfläche streut, dass es wieder von der Oberfläche gestreut wird. Ferner muss der Verdrehungswinkel  $\Gamma$  aus der Kristallrichtung kleiner als ein kritischer Winkel  $\Gamma_C = \sqrt{\frac{2Z_1Z_2e^2}{d \cdot E}}$  sein, sodass das Projektil weiterhin mit einem Kontinuum von Atomen wechselwirkt und der Anteil der Wechselwirkung mit individuellen Atomen der Kette vernachlässigbar bleibt ( $\Gamma \gg \Gamma_C$  entspricht einer „Random Streuung“<sup>2</sup>) [21]. Sind diese Voraussetzungen erfüllt, kann die Mittelung stattfinden, was durch das Integral [21, 63]

$$\bar{V}(\rho) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{\infty} V\left(\sqrt{\rho^2 + x^2}\right) dx \quad (2.50)$$

ausgedrückt wird. Dabei ist  $\rho = \sqrt{y^2 + z^2}$  der Abstand zur jeweiligen Atomkette. Im Falle des abgeschirmten Coulomb-Potentials ergibt sich durch Einsetzen

$$\begin{aligned} \bar{V}(\rho) &= \frac{Z_1 Z_2 e^2}{d} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{x^2 + \rho^2}} f\left(\frac{\sqrt{\rho^2 + x^2}}{a}\right) dx \\ &= \frac{Z_1 Z_2 e^2}{d} \cdot \bar{f}\left(\frac{\rho}{a}\right) \end{aligned} \quad (2.51)$$

Mit einer Abschirmfunktion des *Moliere*-Typs (2.47) ergibt sich so

$$\begin{aligned} \bar{f}\left(\frac{\rho}{a}\right) &= \sum_i a_i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{\rho^2 + x^2}} \exp\left(-b_i \frac{\sqrt{\rho^2 + x^2}}{a}\right) dx \\ &= \sum_i a_i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\rho \sqrt{1 + \left(\frac{x}{\rho}\right)^2}} \exp\left(-b_i \frac{\rho}{a} \sqrt{1 + \left(\frac{x}{\rho}\right)^2}\right) dx \end{aligned}$$

Substituiert man in dieser Gleichung  $\frac{x}{\rho} = \sinh(u)$  und ändert das Differential entsprechend zu  $dx = \rho \cdot \cosh(u) du$  (die Integrationsgrenzen bleiben erhalten), so vereinfacht sich das Integral auf die Form

$$\bar{f}\left(\frac{\rho}{a}\right) = \sum_i a_i \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{b_i \rho}{a} \cosh(u)\right) du$$

Das ist ein Standardintegral, welches bis auf einen Faktor 2 die modifizierte Besselfunktion nullter Ordnung ergibt. Die gemittelte Abschirmfunktion erhält somit die Form

$$\bar{f}\left(\frac{\rho}{a}\right) = 2 \sum_i a_i K_0\left(\frac{b_i \rho}{a}\right) \quad (2.52)$$

---

<sup>2</sup>Bei der Streuung in Random Richtung (entlang einer hoch-indizierten Richtung) stellt die Oberfläche eine perfekte Spiegelebene dar. Folglich gibt es in Random-Richtung nur einen spekulär gestreuten Strahl [62].

Wie man anschaulich erwartet, findet man auch rechnerisch, dass das entlang der Atomketten gemittelte Potential eine Art „Wellblech-Form“ besitzt. Das rechtfertigt die anschauliche Modellierung des Wechselwirkungspotentials mit einer sinusförmigen Harten-Wand, wie im vorherigen Abschnitt.

Es konnte unter anderem in [14, 23, 37–39, 44, 64–67] gezeigt werden, dass die Beschreibung der Regenbogenstreuung gut mit dem OCB-Potential vorgenommen werden kann. Verringert man jedoch die Primärenergie der Projektile, müssen Effekte wie die Pauli-Abstoßung, Austausch-Effekte, Polarisierungseffekte etc. berücksichtigt werden [15]. In diesem Fall wird in dieser Arbeit auf individuelle Paar-Potentiale, errechnet nach der Hartree-Fock Methode, zurückgegriffen. Für ionische Kristalle wurde die Gültigkeit dieses Ansatzes in vorhergehenden Experimenten bereits für *LiF*- bzw. *KCl*-Kristalle gezeigt [23, 37, 40, 62].

Im Gegensatz zum bisher besprochenen Fall des universellen OCB-Potentials, werden bei der Hartree-Fock Methode auch die elektronischen Strukturen von Oberflächenatom und Projektil berücksichtigt. Das Potential kann dann in einen Coulomb- $V_C$  und einen Nicht-Coulomb-Anteil  $V_{NC}$  zerlegt werden, die sich darstellen als [68–71]

$$V_C(\vec{r}) = \frac{Z_1 Z_2}{r} + \int \int \frac{\rho_1(r_1) \rho_2(r_2)}{|\vec{r} + \vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d^3 \vec{r}_1 d^3 \vec{r}_2 - Z_2 \int \frac{\rho_1(r_1)}{|\vec{r} + \vec{r}_1|} d^3 \vec{r}_1 - \quad (2.53)$$

$$- Z_1 \int \frac{\rho_2(r_2)}{|\vec{r} + \vec{r}_2|} d^3 \vec{r}_2$$

$$V_{NC}(\vec{r}) = \int \epsilon(\rho_1(r_1) + \rho_2(|\vec{r} + \vec{r}_1|)) d^3 \vec{r}_1 - \int \epsilon(\rho_1(r_1)) d^3 \vec{r}_1 - \quad (2.54)$$

$$- \int \epsilon(\rho_2(r_2)) d^3 \vec{r}_2$$

Hierbei ist  $\rho_{1/2}$  jeweils die (sphärische) Elektronendichte des Projektils, bzw. des Oberflächenatoms / -ions. Die Vektoren  $\vec{r}$ ,  $\vec{r}_1$  und  $\vec{r}_2$  sind die Ortsvektoren des Ortes, an dem das Potential betrachtet wird, des Projektils und des Oberflächenatoms. Der Coulomb-Anteil (2.53) setzt sich aus der Repulsion der Kerne beider Stoßpartner (1. Term) sowie die Elektronenabstoßung beider Elektronenhüllen (2. Term) und der Anziehung der Elektronenhüllen und des jeweiligen Atomkerns des anderen Stoßpartners (3. bzw. 4. Term) zusammen. Mit  $\epsilon$  in (2.54) ist die Energiedichte eines Gases von freien Elektronen bezeichnet, das sich als eine Summe eines kinetischen und eines Austausch Anteiles darstellt, zu [68]

$$\epsilon(\rho) = C_{kin} \cdot \rho^{\frac{5}{3}} + C_{exch} \cdot \rho^{\frac{4}{3}} \quad (2.55)$$

$$C_{kin} = 0.3 \cdot (3\pi^2)^{\frac{2}{3}}$$

$$C_{exch} = -0.75 \cdot \left(\frac{3}{\pi}\right)^{\frac{1}{3}}$$

Die in dieser Arbeit verwendeten Hartree-Fock Potentiale wurden von *K. Gärtner* auf Basis von Wellenfunktionen von *E. Clementi* und *C. Roetti* [72] berechnet. Dabei wird angenommen, dass sich die Elektronenverteilungen beider Atome bei der Durchdringung nicht verformen [23, 72]. Hartree-Fock Potentiale gelten nur für ionische Systeme, da sie von sphärischen Ladungsverteilungen ausgehen. Es konnte gezeigt werden, dass in *Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>* eine nahezu ionische Bindung vorliegt, sowie dass die

Bindungen in  $Ga_2O_3$  ionisch mit nur geringen kovalenten Anteilen sind [73]. Die Verwendung von Hartree-Fock Potentialen ist für die beiden Systeme demnach gerechtfertigt.

Für eine bessere Implementierung, wurden die Hartree-Fock Paar-Potential-Daten für die verschiedenen interatomaren Abstände analog zu [23] mit dem Ansatz

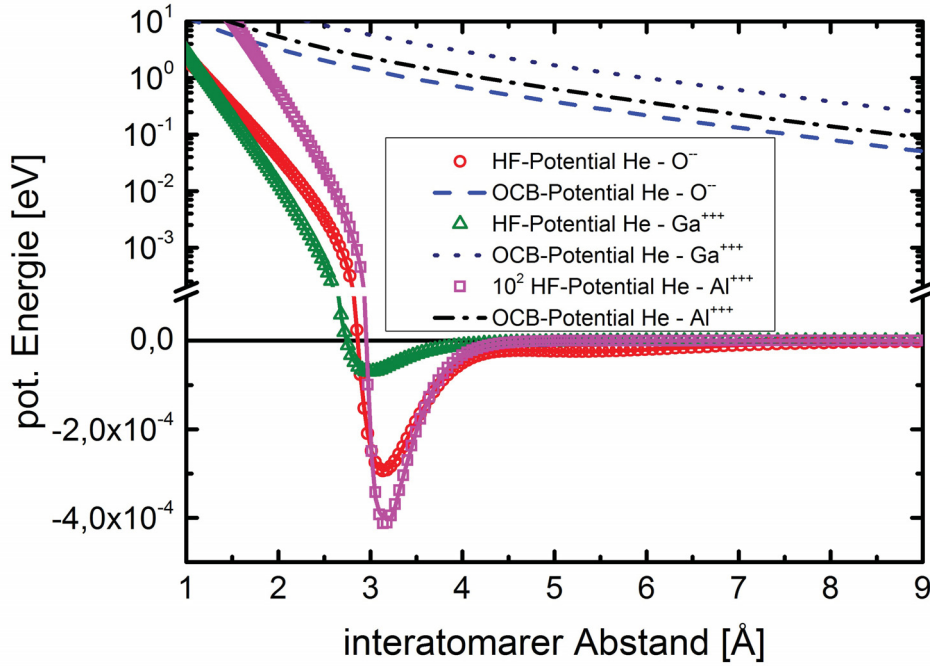
$$V_{HF}(\vec{r}) = \sum_{i=1}^4 a_i \cdot \exp\left(-\frac{r}{b_i}\right) \quad (2.56)$$

angepasst. Die so gefundenen Parameter sind in Tabelle 2.1 festgehalten. In Abbildung 2.11 findet sich ein Vergleich zwischen den Hartree-Fock Potentialdaten für die Wechselwirkungen  $He - Ga^{+++}$ ,  $He - Al^{+++}$  sowie  $He - O^{--}$ , der Anpassung der Potentialdaten nach (2.56) sowie zum jeweiligen OCB-Potential. Die Bezeichnungen  $Ga^{+++}$ ,  $Al^{+++}$  und  $O^{--}$  stellen keine tatsächlichen Ionisationszustände dar, sie entsprechen den Oxidationszahlen in den jeweiligen Verbindungen. Man erkennt, dass die Anpassung mit (2.56) das Hartree-Fock Potential sehr gut in dem interessanten Bereich der interatomaren Abstände für alle Wechselwirkungs-Paare wiedergibt. Der gravierendste Unterschied ist der fehlende attraktive Anteil des OCB-Potentials. Generell wird die potentielle Energie in der Wechselwirkung durch das OCB-Potential überschätzt.

Für die Simulationen wurde ein von *Dr. J. Seifert* in *Mathworks Inc. Matlab* geschriebenes Programm verwendet. Für Details sei auf [14] verwiesen. Mit dem Programm werden die Newton'schen Bewegungsgleichungen (2.44) per Runge-Kutta-Algorithmus numerisch integriert. Es werden einige Trajektorien simuliert und die Simulationen anschließend mit 100.000 Zwischenschritten interpoliert. Die Interferenz wird dann über eine Überlagerung der Phasen der Trajektorien in einem Intervall um den selben Ablenkwinkel gewonnen. In den Simulationen sind keine thermischen Schwingungen der Oberflächenatome berücksichtigt, da sie ohnehin nur einen geringen Einfluss auf den Ablenkwinkel  $\Theta$  haben [74]. Somit werden die Projektile perfekt entlang eines Kreisbogens gestreut. Die Breite der Verteilungen wird dem Experiment über gaußförmige Verbreiterungsfunktionen angepasst, da die Verbreiterung selbst keinerlei Strukturinformationen enthält [14].

	$i$	$He - Ga^{+++}$	$He - Al^{+++}$	$He - O^{--}$
$a_i$	1	-8.1708 eV	-1.73036 eV	-7.14887 eV
	2	-3.95486 eV	-1.45225 eV	-0.00591 eV
	3	5.80144 eV	2.09923 eV	0.13675 eV
	4	8.17097 eV	6.6615 eV	8.51782 eV
$b_i$	1	0.70187 Å	0.30302 Å	0.43594 Å
	2	0.26345 Å	0.26288 Å	0.95868 Å
	3	0.25404 Å	0.30051 Å	0.63257 Å
	4	0.70187 Å	0.21499 Å	0.41687 Å

Tabelle 2.1: Parameter  $a_i$  und  $b_i$  für die Anpassung der Hartree-Fock Potentiale nach dem Ansatz (2.56) für die Wechselwirkungen  $He-Ga^{+++}$ ,  $He-Al^{+++}$  sowie  $He-O^{--}$ .



Abbildungung 2.11: Vergleich der potentiellen Energien zwischen den Hartree-Fock Potentialen, berechnet von *K. Gärtner* (durchgezogene Linien) mit den jeweiligen Anpassungen nach (2.56), und den OCB-Potentialen für die Wechselwirkung von  $He-Ga^{+++}$ ,  $He-Al^{+++}$  sowie  $He-O^{--}$  für verschiedene interatomare Abstände. Man beachte den Achsenbruch und die logarithmische Darstellung der Ordinatenachse über dem Bruch. Das Hartree-Fock Potential für die Wechselwirkung  $He-Al^{+++}$  wurde für einen besseren Vergleich mit den anderen Paar-Potentialen mit einem Faktor  $10^2$  multipliziert.

## 2.4 Linienbreite

Ein zentraler Begriff, der bei der Diskussion der Linienbreite eine Rolle spielt, ist die Kohärenz. Die Projektile müssen in einer festen Phasenbeziehung zueinander stehen. Inelastische Prozesse zerstören durch die Änderung der Energie und somit des Wellenvektors die Kohärenz der Projektile (Dekohärenz). Für  $H$ -Projektile wurde in [75, 76] gezeigt, dass die Anregung lokalisierter Elektronen und Exzitonen Grund für die Dekohärenz ist, da sie neben dem Energieverlust auch prinzipiell Informationen über den Ort des Projektils beinhalten und dieses somit die Kohärenz durch Lokalisierung zusammenbricht. Durch die in *TOF*-Messungen (Time of Flight, Flugzeitmessungen) vorgenommene Trennung von  $H$ -Projektile mit und ohne Energieverlust sowie der Darstellung der jeweiligen Beugungsbilder, konnte gezeigt werden, dass schon für die Anregung eines Elektrons oder Exzitons die Kohärenz vollständig zusammenbricht und sich keine definierten Beugungsreflexe mehr abbilden. Der Anteil an inkohärent gestreuten Projektile verhält sich dabei, wie die



Anzahl an Projektilen, die bei der Streuung an der Oberfläche einen Energieverlust erlitten. Gleichzeitig zeigt das Beugungsbild der Trajektorien ohne Energieverlust nur einen vernachlässigbaren Untergrund. Für *He*-Projekte sind die Anregungsprozesse hingegen stark unterdrückt, wodurch Oberflächenatome, die durch thermische Schwingungen von ihrer Gleichgewichtsposition ausgelenkt sind, für die Dekohärenz verantwortlich sein müssen [76]. So ist es prinzipiell mit *He* Projektilen möglich die thermischen Prozesse, die zum Verlust der Dekohärenz führen, zu untersuchen. Es ist für verschiedene Projektilen möglich, durch die geeignete Wahl von hinreichend niedrigen Einfallswinkeln und Energien die Dekohärenz durch Anregungseffekte zu unterdrücken.

Bei Erhöhung der Kristalltemperatur oder bei Erhöhung von Energie und/oder Einfallswinkel beobachtet man, dass die Beugungsreflexe breiter werden. Im Grenzfall geht die Verteilung in ein klassisches Spektrum über. Das bedeutet, dass die einzelnen Beugungsreflexe nicht mehr voneinander getrennt werden können. Während der zweite Effekt auf die oben beschriebenen Anregungsprozesse und den damit verbundenen Verlust der Kohärenz zurückzuführen ist, wird der erste Aspekt, der Verlust der Kohärenz durch thermische Prozesse, im Rahmen der Debye-Waller Theorie behandelt [8, 9, 14, 16, 23, 77–81]. Hierbei wird die Reduktion der Intensität  $I_0$  ohne thermischer Auslenkungen der Oberflächenatome auf die Intensität  $I$  mit dem Debye-Waller Faktor  $f_{DW} = \frac{I}{I_0}$  beschrieben. Für diesen gilt

$$f_{DW} = \exp(-2W(T)) \quad (2.57)$$

mit

$$W(T) = \frac{1}{2} \langle (\vec{u} \cdot \vec{q}_{\vec{G}})^2 \rangle \quad (2.58)$$

Hier ist  $\vec{u}$  der Vektor, der die Auslenkung der Atome beschreibt und  $\vec{q}_{\vec{G}} = \vec{k}_i - \vec{k}_{\vec{G}}$  der Impulsübertrag während der Streuung. Die eckigen Klammern deuten die Bildung des thermischen Mittelwertes an. Man findet für  $W(T) \sim T$  [8, 23].

Dieser Faktor wurde zunächst für die thermische Atomstreuung hergeleitet. Im Falle der streifenden Streuung kommt die Mittelung des Potentials entlang der Streurichtung zum Tragen. Durch die Wechselwirkung mit  $N$  Atomen und die dadurch entstehende Mittelung über die Wechselwirkung, wird die Auslenkung der Atome effektiv reduziert. Je kleiner der Einfallswinkel ist, desto mehr Atome der Oberfläche tragen zur Wechselwirkung und somit zur Mittelung der Auslenkung der Atomkette bei und desto geringer ist die Auslenkung der Atomkette [23]. Es wurde gezeigt, dass der Rückstoß der Oberflächenatome bei der Streuung vernachlässigbar ist und nur thermische Schwingungen senkrecht zur Oberfläche einen Beitrag zur Streuung liefern [82, 83]. Der Impulsübertrag auf einzelne Atome kann bei der streifenden Streuung vernachlässigt werden [84]. Demnach wechselwirkt aufgrund der Mittelung des Potentials das Projektil effektiv mit einer ausgelenkten Atomkette, statt mit einem individuellen Atom, wobei die Auslenkung der Atomkette entsprechend reduziert ist. Der Debye-Waller-Faktor wird an die veränderte Streugeometrie angepasst. Dies führt zu [16].

$$\bar{f}_{DW} = \exp\left(-2\frac{W(T)}{N}\right) \quad (2.59)$$



Die Zahl  $N$  hängt, wie anschaulich beschrieben, vom Einfallswinkel  $\Phi_{in}$  und von der Oberflächenstruktur ab. Die Experimente bestätigen, dass bis zu Energien von  $E > 3$  keV ( $E_{\perp} \sim 1$  eV für  $\Phi_{in} = 1^\circ$ ) teilweise (abhängig vom Kristall und dessen Präparation) noch ausgeprägte Beugungsstrukturen zu erkennen sind, was einen weiteren entscheidenden Vorteil gegenüber der thermischen Atomstreuung darstellt. In der thermischen Heliumstreuung wird deshalb, um eine zu starke Dekohärenz zu vermeiden, mit Projektilenergien  $E < 100$  meV gearbeitet [9].

In [9] kann die Theorie das Verhalten der Dekohärenz in Abhängigkeit vom Einfallswinkel gut beschreiben. Dabei fand die Anpassung der Messspektren mit Anpassungen von zwei Gauß-Kurven pro Beugungsordnung statt, mit jeweils einer Kurve mit schmaler Breite zur Reproduktion des Reflexes (kohärenter Anteil) und einer breiteren Kurve zur Anpassung der Verbreiterung in Abhängigkeit zum Einfallswinkel (dekohärenter Anteil). Das Verhältnis der Intensitäten wurde als von der Beugungsordnung abhängiger Debye-Waller Faktor gedeutet. Anders als in [75, 76] argumentieren die Autoren in [9] allerdings, dass die Dekohärenz durch elektronische Anregungen zu einer Verbreiterung der Reflexe führt, statt des beobachteten, nahezu strukturlosen klassischen Untergrundes. In [75, 76] konnten die Messspektren eindeutig durch die Verwendung einer schmalen Lorentzkurve mit fester Breite für die Reflexe und durch eine breite Gaußkurve für den Untergrund angepasst werden. Der Übergang von der Beugung zu einer klassischen Verteilung kann so durch Anregungsprozesse auf der Oberfläche und einen somit steigen Anteil eines inkohärenten, klassisch zu beschreibenden Untergrundes erklärt werden [14]. Die Streuung mit *He*-Projektilen zeigt lediglich eine Verbreiterung der Beugungsreflexe, sodass eine Anpassung der Linienform der Reflexe in [14] mittels einer Voigt-Funktion stattfand, während in [9] eine Linearkombination aus Gauß- und Lorentz-Funktion verwendet wurde. Für eine weiterführende Diskussion zu den theoretische Überlegungen sei auf [9] und [14] verwiesen. Letztlich ergibt sich die Verbreiterung der Beugungsreflexe aus der Faltung der Intensitätsverteilung mit einer Funktion, abhängig von Energieschärfe, Divergenz und Ausdehnung des Projektilstrahls sowie der Detektorauflösung, und mit einer Funktion abhängig von Projektil, Energie und Einfallswinkel [14].



# 3 Experimenteller Aufbau

Die streifende Streuung schneller Atome und Ionen stellt mit ihrer Sensitivität auf Verschiebungen der Atome / Ionen einer Kristalloberfläche im Zehntel-Å-Bereich eine präzise Messmethode dar. Durch diese Sensitivität werden jedoch hohe Ansprüche an die Oberflächengüte gestellt. Die Experimente im Rahmen dieser Arbeit wurden an der „EZR1-Anlage“ der Arbeitsgruppe „Physik der Grenzflächen und dünnen Schichten“ am Institut für Physik der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Humboldt-Universität zu Berlin durchgeführt. Im Folgenden soll der Beschleuniger, die UHV-Streukammer sowie der Detektor vorgestellt werden. Dabei wird auf die vorangegangenen Arbeiten an dieser Anlage [23, 85, 86] und den darin enthaltenen Beschreibungen Bezug genommen, da die Messanlage für die hier durchgeführten Messungen im Wesentlichen entsprechend dieser Beschreibungen aufgebaut war.

## 3.1 Der Beschleuniger

Ein positiv geladener Ionenstrahl wurde mittels einer Elektron-Zyklotron-Resonanzquelle (EZR, „Nanogan“ von der Firma Pantechnik S.A.; Bayreux, Frankreich; Abbildung 3.1 (a)) erzeugt. In den Quellbereich (Abbildung 3.1 (a), (1)-(2)) werden Gas-Atome oder -Moleküle über die Regulierung mit einem Nadelventil eingelassen und durch Elektronenstöße ionisiert. Die Effizienz des Vorgangs wird durch einen *NdFeB*-Permanentmagneten um den Quellbereich gesteigert. Es handelt sich um eine Minimum-*B*-Struktur, was bedeutet, dass das Magnetfeld im Inneren der Quelle minimal ist und nach außen hin auf  $B = 0.72$  T zunimmt [85]. Die Elektronen werden so auf Schraubenbahnen um die Magnetfeldlinien gezwungen. Die Mikrowellenfrequenz wurde zu 10 GHz gewählt. Für die Elektronen entstehen in der Minimum-*B*-Struktur sogenannte EZR-Flächen, in denen die Mikrowellenfrequenz gerade der Zyklotronfrequenz

$$f_Z = \frac{e}{m_e} \frac{B}{2\pi}$$

der Elektronen entspricht. Sie ist abhängig von der spezifischen Ladung des Elektrons und dem *B*-Feld der Permanentmagneten. Die Elektronen werden so auf Energien von bis zu 10 keV beschleunigt. Die Elektronenbahnen werden durch die verwendeten hohen Magnetfeldstärken und dem somit großen Radius der Spiralbahnen entsprechend lang. Dadurch und durch die hohen Energien der Elektronen, können diese vielfach mit einem Atom oder Molekül wechselwirken, sodass auch hochgeladene Ionen (bis zu  $q = 20$  und höher [85, 87]) erzeugt werden können.

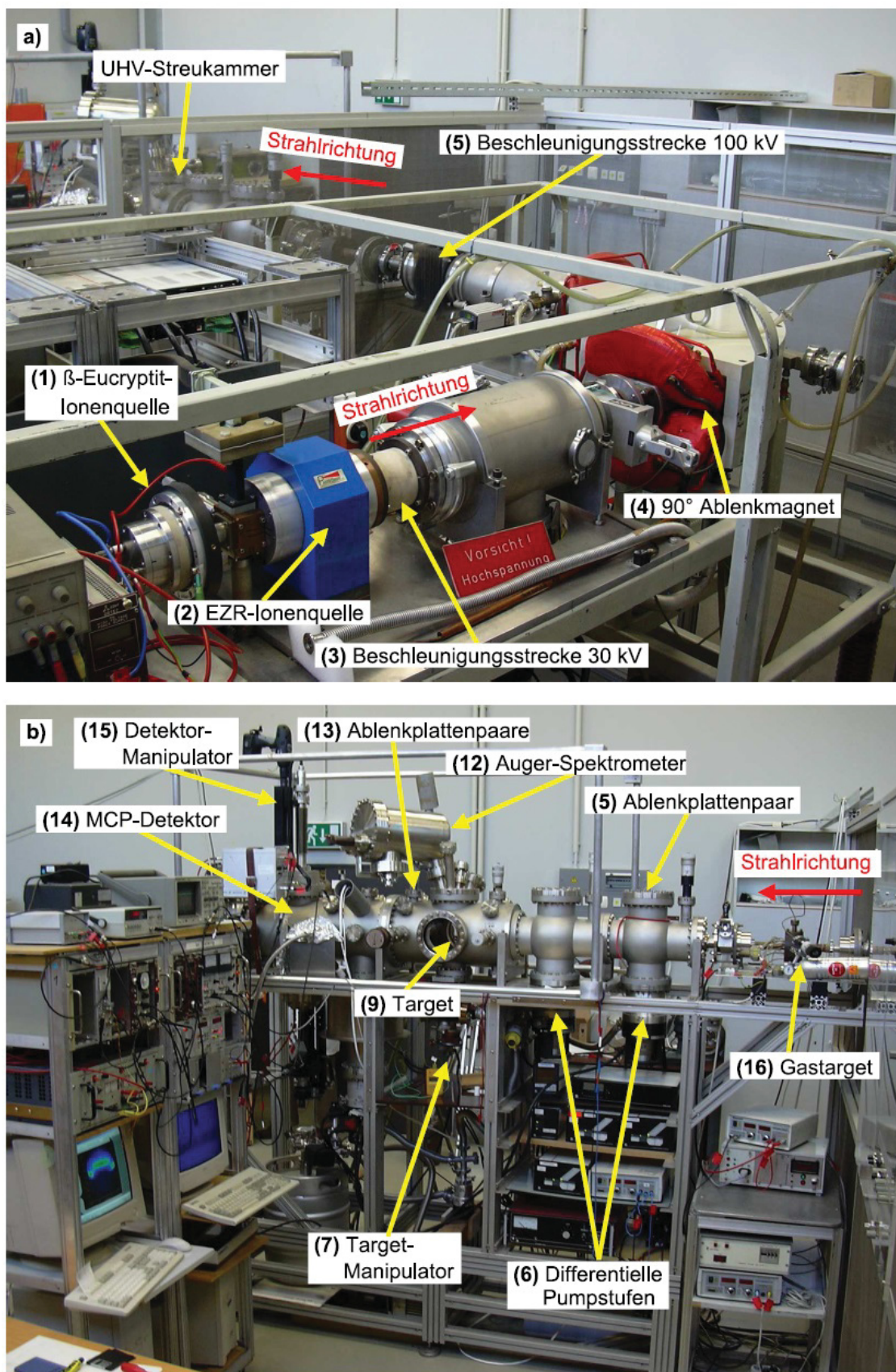


Abbildung 3.1: Darstellung des experimentellen Aufbaus der EZR1-Anlage. (a) Der Beschleuniger. (b) Die Streukammer (Details siehe Text; aus [23] entnommen).



Durch Ionisation freiwerdende Elektronen werden beschleunigt und können so ihrerseits weitere Atome oder Moleküle ionisieren. So wird ein Plasma erzeugt und erhalten. Typische Gasdrücke befanden sich im Bereich von  $10^{-5}$ - $10^{-4}$  mbar, typische Mikrowellenleistungen im Bereich einiger Watt. Für die Messungen im Rahmen dieser Arbeit wurden typischerweise die Gase  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$  und  $\text{H}$  (und  $\text{H}_2$ ) verwendet, welche über „Minicans“ an den Quellbereich angeschlossen und in ihn hinein geleitet wurden.

Die erzeugten Ionen werden durch das Anlegen einer regelbaren Absaugspannung  $U_a$  aus dem Quellbereich geführt. Der Aufbau ist für Absaugspannungen von bis zu 30 keV ausgelegt. Eine erste Fokussierung findet mittels des elektrischen Feldes einer Einzellinse statt (Abbildung 3.1 (a), (3)), bevor der Ionenstrahl in einen  $90^\circ$ -Ablenkmagneten (Abbildung 3.1 (a), (4)) mit dem Radius  $R$  für eine Selektierung der Projektile nach der spezifischen Ladung nach

$$B = \frac{\sqrt{2U_a}}{R} \left( \frac{|q|}{m} \right)^{-\frac{1}{2}}$$

mit dem regelbaren Magnetfeld  $B$  geleitet wird. Da die Selektion der Projektile nur nach der spezifischen Ladung stattfindet, können prinzipiell auch verschiedene Projektile mit gleicher spezifischer Ladung (zum Beispiel höher geladene Ionen:  $\text{H}_2^+$  und  $^4\text{He}^{2+}$  [85]) den Ablenkmagneten passieren. Deren Anteil ist bei den hier durchgeführten Experimenten vernachlässigbar [85]. Das Magnetfeld wird mittels einer Hall-Sonde gemessen. Der Anzeigewert für eine Justierung des Magnetfeldes des Ablenkmagneten ist die aus der Umrechnung des Magnetfeldes abgeleitete Projekttilmasse. Auf einer für Hochspannungen isolierten Plattform montiert, kann die gesamte bisher beschriebene Apparatur auf eine Hochspannung gelegt werden, sodass die Projektile „nachbeschleunigt“ werden (Abbildung 3.1 (a), (5)). Es können dabei Spannungen von bis zu 100 kV an den Beschleuniger angelegt werden. Da sich die Beschleunigungs- und Absaugspannung addieren, können die Projektile so auf Energien von bis zu 130 keV beschleunigt werden.

Für die hier durchgeführten Experimente sind weniger die hohen, als die niedrigen Projekttilenergien interessant. Die Verwendung von Absaugspannungen  $U_a < 2$  keV ist nicht mehr effektiv, da der Beschleuniger auf Absaugspannungen von  $U_a = 30$  keV optimiert ist und somit der Projekttilstrom zu niedrig wird. Die Schaltung der „Nachbeschleunigung“ wurde deshalb so konzipiert, dass man sie durch einfache Umschaltung in eine Abbremsung der Projektile umwandeln kann. So können Projekttilstrahlen für einen hohen Projekttilstrom mit einer hohen Absaugspannung erzeugt und im Nachhinein abgebremst werden. Dann war es möglich mit Projekttilstrahlen von  $E \geq 100$  eV zu arbeiten. Das Verhältnis zwischen Absaugspannung und letztlicher Energie ist für ein Verhältnis von etwa 1 : 4.3 optimiert. Um einen Beitrag von bereits im Laufrohr hinter dem Ablenkmagneten durch Stöße mit Restgasatomen neutralisierten Projektile zum Projekttilstrom zu vermeiden, wurden die Platten der Nachbeschleunigung bzw. Abbremsung leicht verkippt zur eigentlichen Laufrichtung des Strahles angebracht. Durch die so unterschiedlichen Laufwege, können durch die Verwendung einfacher Schlitzblenden die neutralen und somit unabgebremsten Projektile ausgeblendet werden. Die Reinheit des Strahles wurde für jede Messung, also für jede eingestellte Energie, überprüft, indem nach Einstellung des Strahles die Abbremsspannung ausgeschaltet wurde. Die dann verbleibende Intensität im Detektor entspricht dem Anteil an unabgebremsten Projekttilen. Bei geschickter

Einstellung der Parameter des Gasdruckes, der Mikrowellenleistung, der Absaug- sowie der Beschleunigungs- bzw. Abbremsspannung, der Fokussierungslinse und der Schlitzblenden, konnte das Verhältnis von dem unabgebremsten zum abgebremsten Projekttilstrahl auf (energieabhängig)  $\leq 5 - 10\%$  gesenkt werden.

Um die Projektile zu neutralisieren, wurde hinter der Beschleunigungsstrecke ein „Gastarget“ eingebaut (Abbildung 3.1 (b), (16)). Im Wesentlichen ist es wie die Gasquelle des Quellbereichs aufgebaut. Das Neutralisierungsgas wird mittels eines Ventils aus einer Minican entnommen. Vorzugsweise werden für die Neutralisierung Gase mit gleicher oder ähnlicher Ionisierungsenergie, wie die Projektile, verwendet. Im Falle von *He*-Projektile, wurde ein *He*-Gas zur Neutralisierung verwendet. Aufgrund des erschwerten Pumpens von Wasserstoff, wurde statt eines *H*-Gases zur Neutralisierung von *H*-Projektile *Kr* verwendet. Der Gas-Druck des Neutralisierungs-Gases wurde so gewählt, dass der Druck im Laufrohr zwischen Ablenkmagneten und Gastarget nicht über  $p = 2 \cdot 10^{-6}$  mbar anstieg. Dieser Druck als obere Grenze, stellte einen guten Kompromiss zwischen gesteigerter Ausbeute an neutralen Projektile und dem Druck in der Streukammer dar.

Die Breite der Energieverteilung kann mit  $< 0.2\%$  angegeben werden [23]. Die Nullpunktsverschiebung aufgrund des Potentials des Plasmas im Quellbereich ist für die hier verwendeten Energien vernachlässigbar [23, 85].

## 3.2 Die UHV-Streukammer

Nach der Neutralisierung treten die Projektile in die Streukammer ein. Dort treffen sie zunächst auf drei horizontale und vertikale Paare an Schlitzblenden mit jeweils mehreren Schlitzen (Abbildung 3.2, 2-4). Da im Gastarget Drücke von  $p > 10^{-6}$  mbar herrschen, sind die Blenden in zwei, jeweils durch Turbomolekularpumpen differentiell gepumpte Druckstufen eingebaut (Abbildung 3.1 (b), (6); Abbildung 3.2 6). Die Schlitzbreiten betragen 0.1, 0.2 und 1 mm. Für die meisten Experimente wurden nur das erste und das letzte Blendenpaar mit den Schlitzen der Breite 0.2 mm verwendet. Das mittlere Blendenpaar diente zu einer eventuellen weiteren Einschränkung des Messstrahles, wurde aber in der Regel nicht verwendet. Aus dem gegenseitigen Abstand der Paare von 730 mm, ergibt sich eine Strahldivergenz von  $0.03^\circ$  [23, 85]. Die Streukammer an sich wird durch eine weitere Turbomolekularpumpe, die durch eine Boosterpumpe vom Vorvakuum getrennt ist, in Verbindung mit einer mit flüssigem Stickstoff betriebenen Titan-Sublimationspumpe evakuiert (Abbildung 3.2 10 und 11). Die Bedeckung pro Zeit der Oberfläche mit Adsorbata-tomen  $\frac{dN}{dt}$  verhält sich zum Basisdruck der Streukammer  $p$ , wie [13]

$$\frac{dN}{dt} \sim p \cdot \frac{\exp(-const. \cdot T)}{\sqrt{T}}$$

mit der Umgebungstemperatur  $T$ . Der Basisdruck muss also während der Experimente möglichst klein gehalten werden. Mit dem verwendeten Aufbau wurden Basisdrücke im Bereich von  $p \sim 10^{-11}$  mbar erreicht. Der Druck wurde dabei sowohl über eine Extraktor-Druckmessröhre (Ionivac IE514, *Leybold*), sowie ein Penning-Manometer gemessen. In den differentiellen Druckstufen ist ein Plattenpaar angebracht (Abbildung 3.1 (b), (5); Abbildung 3.2 5). Dort werden durch das Anlegen

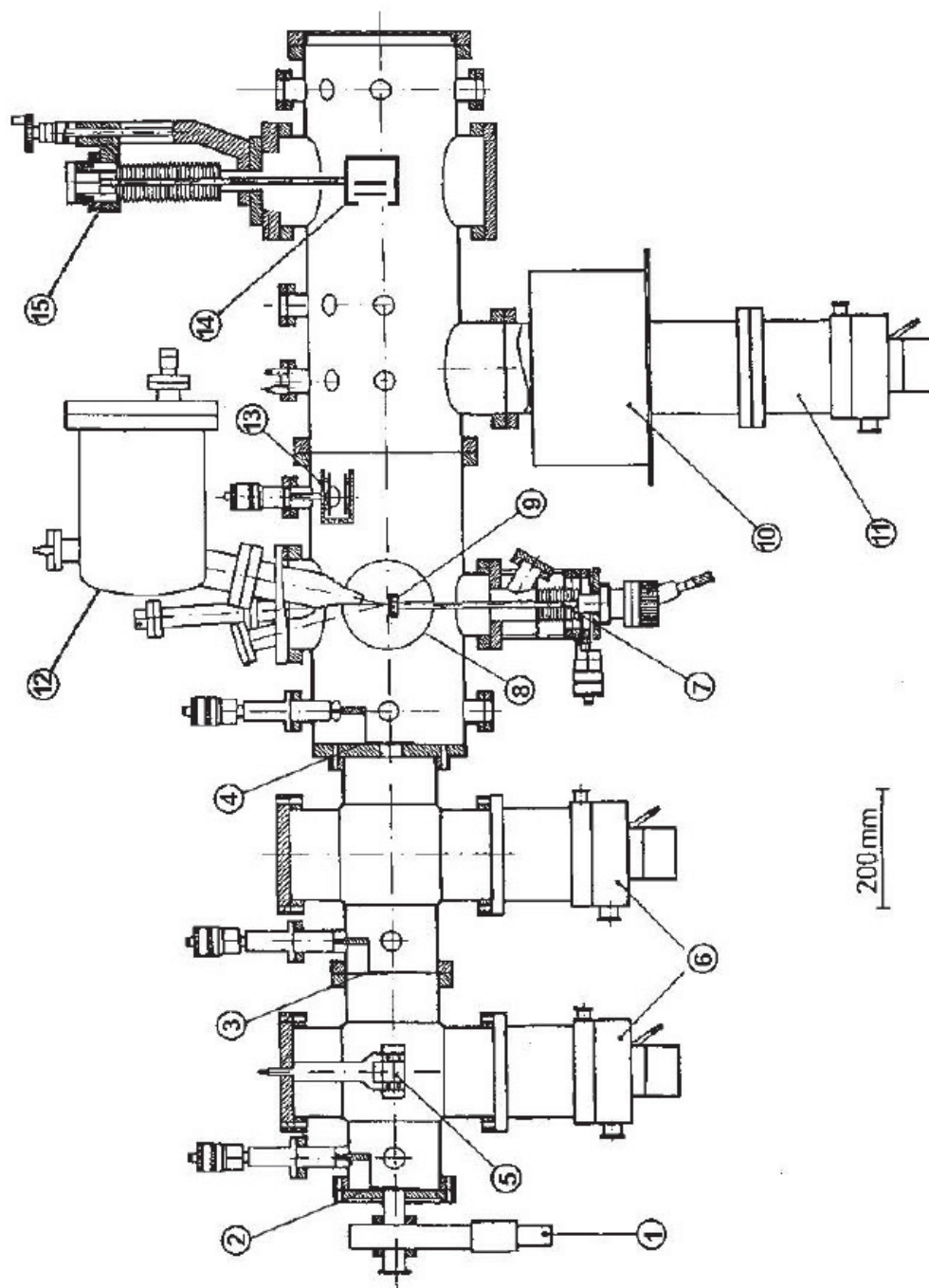


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau der UHV-Streukammer der EZR1-Anlage. Der Projektilstrahl tritt von links in die Apparatur ein (Details siehe Text; Bild aus [23] entnommen).

eines elektrischen Feldes im Gastarget nicht neutralisierte Projektilen abgelenkt, sodass der Projektilstrahl bei den Messungen vollständig neutral war.

In einem Abstand von 230 mm befindet sich die Probe (Abbildung 3.1 (b), 9; Abbildung 3.2 9). Kristalle (Targets) werden auf einen Probenhalter (Targethalter) befestigt. Der Halter ist wiederum auf einem Manipulator montiert (Abbildung 3.1 (b), 7; Abbildung 3.2 7). Der Manipulator ist in alle drei Raumrichtungen verschiebbar, azimuthal um mehr als  $360^\circ$  zu verdrehen (begrenzt durch die am Manipulator angebrachten Drähte für Hochspannung, Filamentstrom etc.), sowie zur Strahlachse um bis zu  $3^\circ$  verkippt. Zusätzlich ist ein Mechanismus angebaut, sodass der Probenhalter um bis zu  $90^\circ$  für zum Beispiel *LEED*-Messungen (Low Energy Electron Diffraction) an dem seitlich an der Kammer angebrachten *SPA-LEED*-Systems (Spot Profile Analysis LEED; Abbildung 3.2 8) verkippt werden konnte. Die seitliche Anbringung des *SPA-LEED*-Systems war notwendig, da sich über dem Probenhalter ein Energieanalysator (CLAM2, *VG Scienta*; Abbildung 3.1 (b), 12; Abbildung 3.2 12) für Auger-Elektronen-Spektroskopie Messungen (*AES*) befindet. Die Streukammer ist zur Abschirmung des Erdmagnetfeldes zusätzlich mit einer 1 mm dicken  $\mu$ -Metallschicht ausgekleidet.

Der Probenhalter für die in dieser Arbeit verwendeten  $Ga_2O_3$ -Kristalle bestand aus einem Tantal-Blech als Halterung für die Elektronenstoß-Heizung (*VG Scienta*). Über der Heizung befand sich ein weiteres Tantal-Blech, welches elektrisch isoliert von den vorhergehenden Komponenten aufgebracht wurde. Zunächst wurde ein Tantal-Block auf den so aufgebauten Probenhalter aufgeschraubt, auf dem der Kristall aufgesetzt und über eine Konstruktion mit Metallplättchen gehalten wurde. Die Ausheiltemperatur wurde über ein Thermoelement gemessen, welches über Keramikröhrchen von der Umgebung isoliert und an einer Schraube an den Tantal-Block geschraubt wurde. Die Verwendung eines Tantal-Blocks führte zu einer Zersetzung der Kristalle bei hohen Ausheiltemperaturen, weshalb der Tantal-Block durch einen Block aus Platin ersetzt wurde.

Der Probenhalter für die in dieser Arbeit verwendeten  $Al_2O_3$ -Kristalle bestand aus einem Tantal-Blech als Halterung für die Elektronenstoß-Heizung. Als Filament wurde das Filament einer Leuchtstoffröhre verwendet, welches mit Tantal-Plättchen gehalten wurde. Von dem Aufbau elektrisch isoliert, wurde ein zweites Tantal-Blech aufgesetzt. Dieses kann für den Heizbetrieb auf eine Hochspannung (typisch  $\sim 1$  kV) gelegt werden. In einen aufgeschraubten Tantal-Block mit kreisrunder Aussparung, wurden dann die Kristalle eingesetzt und mit einem Tantal-Draht gehalten. Die Ausheiltemperatur wurde mittels einem Pyrometer kontrolliert.

Für Details zu dem verwendeten Aufbau des Probenhalters sei auf die entsprechenden Kapitel verwiesen.

### 3.3 Der Detektor

Der verwendete Detektor war ein Multi-Channelplate (*MCP*, *Roentdek Handels GmbH*; Abbildung 3.1 (b), 14; Abbildung 3.2 14; Abbildung 3.3) mit einem *DLD40* Detektionskopf, einer *DLATR6* Verstärker-Diskriminator-Einheit und einem *HM1* bzw. *HM1B* Time-to-Digital-Konverter. Der Detektor ist ortsauflösend aufgebaut, das heißt es können vollständige Streuverteilungen in wenigen Minuten (energie-/zählratenabhängig) aufgenommen werden.



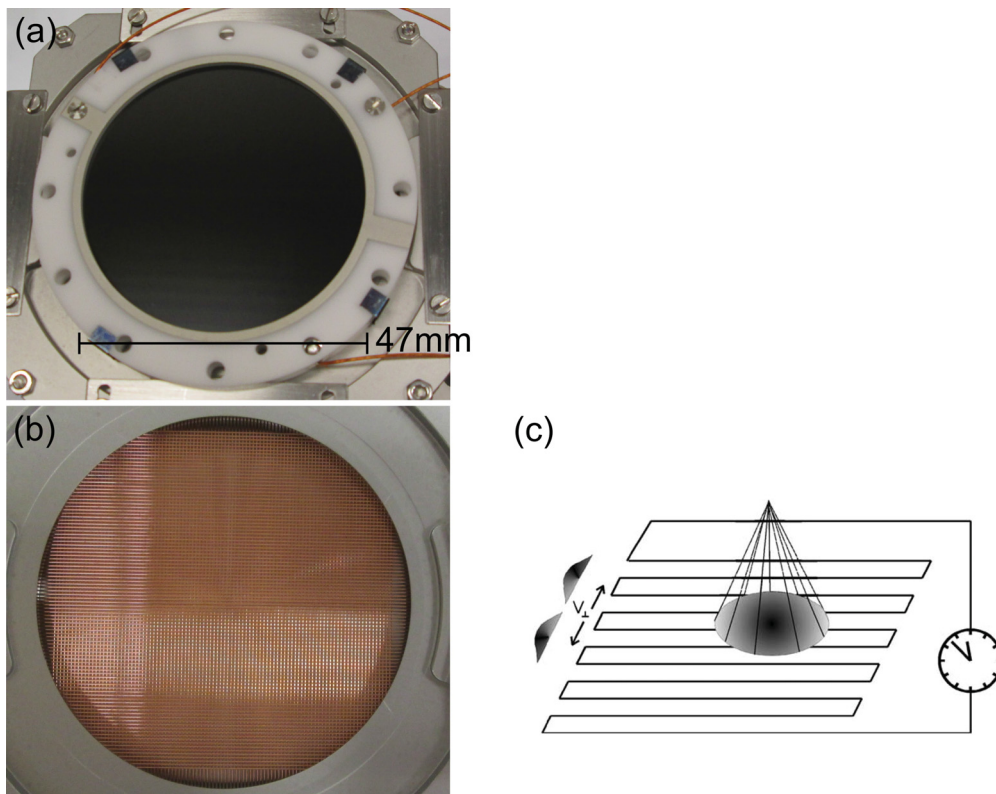


Abbildung 3.3: Verwendeter MCP-Detektor (ohne Metallgehäuse). (a) Gezeigt ist das vordere Keramikplättchen mit einer aktiven Fläche von 47 mm im Durchmesser. (b) Beide Metallgitter hinter den Keramikplättchen für die Ortsauflösung. (c) Prinzipbild für die eindimensionale Detektion des Auftreffortes der Elektronenlawine nach Auftreffen eines Projektils (Details siehe Text; (c) aus [88] entnommen).

Im Prinzip besteht ein MCP aus einer zur Strahlrichtung verkippten Anordnung von Mikrokanälen in einem Keramikplättchen (Abbildung 3.3 (a)). Durch die Verkipfung ist es garantiert, dass sich kein Projektil durch einen Kanal bewegen kann, ohne auf die Kanalwand zu treffen. Die Mikrokanäle sind mit einem Halbleiter-Material beschichtet [85, 89]. Die verwendete Beschichtung muss für einen effizienten Detektor eine niedrige Austrittsarbeit und Ionisierungsenergie besitzen. Ein Projektil trifft auf die Keramikwand des Mikrokanals und löst ein oder mehrere Elektronen aus. Durch eine um das Keramikplättchen angelegte Hochspannung von gewöhnlich  $U \sim 2 \text{ kV}$ , wird das ausgelöste Elektron bzw. werden die ausgelösten Elektronen in Strahlrichtung beschleunigt. Eine Metallbeschichtung an Vorder- und Rückseite der Keramikplättchen dient dabei als Elektroden [89]. Wiederum durch die Verkipfung der Kanäle, trifft das Elektron bzw. treffen die Elektronen erneut auf die Keramikwand und lösen ihrerseits erneut Elektronen aus. So entsteht eine Elektronenlawine, die auf den einen Kanal beschränkt ist. Um die Effizienz dieser Methode noch zu erhöhen, wurden zwei Keramikplättchen mit zueinander verkippten Kanälen hintereinander aufgebracht (Chevron-Anordnung). Die Verstärkung des Signals steigt durch die Anordnung um bis zu zwei Größenordnungen auf einen Verstärkungsfaktor von bis zu  $10^6$  [89].

Das auf diese Art verstärkte Signal eines einzelnen Projektils trifft auf eine Gitteranordnung hinter den Keramikplättchen (Abbildung 3.3 (b)). Die Gitteranordnung

besteht im Prinzip aus zwei hintereinander, senkrecht zueinander montierten und jeweils zu einem Gitter aufgewickelten Drähten. Eine auftreffende Elektronenlawine erzeugt im jeweiligen Draht ein Signal mit einer Pulslänge von einigen Nanosekunden, welches sich zu den beiden Enden des jeweiligen Drahtkonstruktes bewegt. Anhand der Zeitdifferenz der beiden Signale kann rekonstruiert werden, wo die Elektronenlawine und somit letztlich wo das Projektil auftraf [88]. Die Informationen beider Drähte kombiniert ergibt eine vollständige Beschreibung des Auftreffpunktes  $(x, y)$  des Projektils. Ein Prinzipbild ist in Abbildung 3.3 (c) für den eindimensionalen Fall gezeigt. Die aktive Fläche des Detektors ist nahezu kreisförmig mit einem Durchmesser von  $d = 47$  mm. Die Ortsauflösung beträgt ca. 0.1 mm, die Zeitauflösung etwa 1 ns [85, 88]. Vor dem MCP ist ein Drahtgitter angebracht, welches auf eine Spannung im Bereich von  $U \sim -100$  V gelegt wird. Das verhindert eine Detektion von Elektronen. Um ein Übergreifen des elektrischen Feldes des MCPs in die Umgebung zu vermeiden, wurde der Detektor in ein Metallgehäuse eingebaut. Die Auslesung des Detektors fand mit dem Programm „CoboldPC“ statt. Aufgrund von Totzeiteffekten, war die maximale Zählrate auf  $< 20$  kHz beschränkt. Höhere Projektilströme führen also zu keiner Reduzierung der effektiven Messzeit. Um Schäden bzw. eine schnellere „Alterung“ der Mikrokanalplatten zu vermeiden, wurde mit Zählraten  $< 10$  kHz gearbeitet. Höhere Projektilströme wurden genutzt, um den Strahl mittels des zweiten Blendenpaares weiter einschränken zu können, sodass die Strahldivergenz verkleinert und die Winkelauflösung gesteigert werden konnte. Alterungs- und Verschleißerscheinungen, wie ein Absinken der Nachweiseffizienz des Detektors, konnten durch das Tauschen oder Drehen der Mikrokanalplatten behoben werden. Nach der Prozedur, erreichten die Nachweiseffizienzen des Detektors jeweils fast ihren ursprünglichen Wert.

Der direkte Projektilstrahl ist aufgrund seiner geringen räumlichen Ausdehnung sehr intensiv auf wenige Kanäle, bei guter Strahlpräparation auf einen einzelnen Kanal, beschränkt. Trifft der direkte Strahl auf den Detektor, kann das Mikrokanalplättchen dauerhaft beschädigt werden. Um diese zu vermeiden, wurde hinter dem Manipulator des Probenhalters eine zusätzliche Blende angebracht, die es ermöglicht den direkten Strahl abzuschatten. So konnten auch Messungen mit Einfallswinkeln von wenigen Zehntel-Grad durchgeführt werden. Bei den Messungen an den  $Al_2O_3(0001)$ - und  $(11\bar{2}0)$ -Flächen konnten atomar glatte Oberflächen erzeugt werden, sodass die Breite der Beugungsreflexe nicht breiter als der direkte Projektilstrahl war. So beschränkte sich die Intensität auf teilweise einen Kanal pro Beugungsreflex. Es entstanden Sättigungseffekte im Detektor, die sich entweder durch die völlige Überdeckung des Spektrums durch einen einzelnen Beugungsreflex, oder in der Übersteuerung des Detektors an der Stelle, was von der Auslesesoftware als  $I = 0$  interpretiert wurde, äußerten. Die Angabe der Zählrate war in zweiterem Fall nicht mehr zuverlässig, sodass der Strahl weiter abgeschwächt werden musste. Dies führte selbst bei hohen Energien zu Zählraten von teilweise  $< 100$  Hz, sodass die Messungen zeitaufwendig waren.

Die Nachweiseffizienz liegt für Projektil mit  $E > 6$  keV bei 52%. Für kleinere Energien sinkt sie exponentiell ab [10–12]. Für niedrige Energien im Bereich  $E < 500$  eV ergab die in diesem Energiebereich geringe Nachweiseffizienz zusammen mit der zunehmend ineffizienteren Projektilstrahlerzeugung einen hohen Zeitaufwand von bis zu 60 min für die Messungen im Bereich der Projektilenergien von  $E = 100$ -300 eV.

## 3.4 Eichung

Für die Eichung des MCP-Detektors wird ein Projektilstrahl erzeugt. Für die Eichung in  $y$ -Richtung<sup>1</sup> kann der Projektilstrahl aufgezeichnet und anschließend der MCP-Detektor über einen Manipulator (Abbildung 3.1 (b), 15; Abbildung 3.2 15) definiert verschoben werden. Diese Verschiebung ist in  $x$ -Richtung nicht möglich. Der Projektilstrahl wird für die Eichung in  $x$ -Richtung durch das der Probe nächste Plattenpaar definiert verschoben. So waren nur kleine Verschiebungen des Projektilstrahls möglich. Aufgrund der bekannten Geometrie, kann aus der Verschiebung das Verhältnis der Anzahl der Kanäle zum Ablenkwinkel geschlossen werden. Beide Werte müssen jeweils über den gesamten aktiven Bereich des MCP gemittelt angegeben werden. Für den in den hier vorgestellten Messungen verwendeten Detektor ergaben sich die Werte  $0.0082^\circ$  pro Kanal in  $x$ -, bzw.  $0.0084^\circ$  pro Kanal in  $y$ -Richtung. Die Auflösung ist also höher, als die Strahldivergenz. Die leicht elliptische Form des MCP wurde in den jeweiligen Auswertungen der Messungen berücksichtigt. Die Fehler der bestimmten Werte können zu  $\delta < 0.0003^\circ$  abgeschätzt werden [23].

---

<sup>1</sup>Die hier angegebenen  $x$ - und  $y$ -Richtungen sind auf das MCP bezogen. Sie entsprechen der  $y$ - und  $z$ -Richtung von der Probe aus gesehen.



## 4 Galiumoxid

Leitende transparente Oxide (Transparent Conducting Oxides, *TCOs*) wie  $ZnO$ ,  $SnO_2$ ,  $In_2O_3$  und  $\beta\text{-Ga}_2O_3$  erlebten über die letzten Jahrzehnte ein steigendes Interesse. Grund dafür ist die große Bandlücke. Im Fall von  $\beta$ -Galiumoxid ( $\beta\text{-Ga}_2O_3$ ) beträgt sie 4.9 eV [90–92]. Das Oxid erscheint damit sowohl im sichtbaren, wie auch im tief ultravioletten spektralen Bereich (Deep Ultraviolet, *DUV*) transparent. Die Transparenz konnte u.a. in [93, 94] nachgewiesen werden. Das macht das System  $\beta\text{-Ga}_2O_3$  für Anwendungen als *DUV*-Detektor [95, 96] und als UV-LEDs [97] interessant. In diesem Zusammenhang wurden Nanodrähte auf Basis von  $\beta\text{-Ga}_2O_3$  hergestellt [98, 99], welche möglicherweise für die Anwendung als „solar-blind“ Photodetektoren verwendet werden können [99]. Weitere Anwendungen sind als Leuchtbeschichtungen für Displays und Bildschirme [100], bei der Herstellung von Schottky-Dioden [101], als Substrat für Homo-Epitaxie [102] sowie als Substrat für *GaN*-Laserdioden [103–105]. Für letztere Anwendungen wurden bisher Saphir- und *SiC*-Substrate verwendet, die allerdings isolierend im Falle von Saphir-Substraten sind oder eine Absorptionslinie im blauen Spektralbereich im Falle von *SiC*-Substraten besitzen und somit die Effizienz der Laserdiode vermindern [103].

Eine verbreitete Anwendung ist der Einsatz als Gas-Sensor (bei hohen Temperaturen) [91, 106–109]. Dabei wird die Tatsache ausgenutzt, dass die Leitfähigkeit von Galiumoxid von der Umgebung abhängt. So ist aus der Literatur bekannt, dass beim Ausheilen unter reduzierender Atmosphäre die Kristalle halbleitendes Verhalten zeigen, während sie beim Ausheilen unter oxidierenden Bedingungen isolierend sind. Als Ursache für die halbleitenden Eigenschaften nach dem Ausheilen in reduzierender Atmosphäre werden Sauerstoff-Fehlstellen genannt, welche im Gitter als Donatoren wirken [91, 106, 110–121]. Für die Leitfähigkeit  $\sigma$  konnte das Verhalten  $\sigma \sim p_{O_2}^{-1/4}$  mit dem Sauerstoffpartialdruck  $p_{O_2}$  empirisch abgeleitet werden [114, 116]. Dieser Zusammenhang ist von Interesse, da die Probenpräparation im Rahmen dieser Arbeit im UHV durchgeführt wurde. Das UHV stellt eine reduzierende Atmosphäre dar. Durch die halbleitenden Eigenschaften entstanden weitere Anwendungen, wie die Verwendung als leitende und transparente Kontaktierungen für zum Beispiel Solarzellen [118, 122] und als transparente Feldeffekttransistoren [123, 124].

Während einige Untersuchungen an dünnen Filmen vorgenommen werden konnten (siehe unten), sind Untersuchungen an Einkristallen rar. Grund dafür ist die große Bandlücke, die bei traditionellen Oberflächenuntersuchungsmethoden mit Elektronen (*LEED*, *STM* usw.) zu Aufladungseffekten führen kann.

Für Galiumoxid sind fünf unterschiedliche Modifikationen bekannt:  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\delta$  und  $\epsilon$ . Die einzig stabile Phase ist  $\beta\text{-Ga}_2O_3$  [90, 103, 111, 125–127]. Die  $\alpha$ -Phase ist metastabil. Oberhalb einer Temperatur von etwa  $T = 600^\circ\text{C}$  wandelt sie sich in die  $\beta$ -Phase um [126–128]. Alle anderen Phasen wandeln sich bei genügend hohen Temperaturen ebenfalls zur  $\beta$ -Phase um [127].

$\beta\text{-Ga}_2O_3$  wurde bisher über verschiedene Methoden gewachsen. Für dünne Filme wurden die Methoden der Pulsed Laser Deposition (*PLD*) [91], des Magnetron Sputtering [98, 106, 114, 129], der Electron Beam Evaporation [124], der Plasma

Enhanced Atomic Layer Deposition (*PEALD*) [130], des Chemical Vapor Transport (*CVT*) [131], der Chemical Vapor Deposition (*CVD*) [99, 132], der Metal Organic Chemical Vapor Deposition (*MOCVD*) [133, 134], der Metal Organic Vapor Phase Epitaxy (*MOVPE*) [135, 136, 136], der (Plasma-Assisted) Molecular Beam Epitaxy [93, 95, 137], der Oxidation von *CoGa*(100)-Kristallen unter Sauerstoffzugabe [128, 138, 139], der Atomic-Layer Deposition (*ALD*) [94] und der Spray Pyrolysis [100] eingesetzt. Hetero-epitaktische Filme bildeten zumeist amorphe oder polykristalline Strukturen aus.

Für Volumen-Kristalle (*Bulk*-Kristalle) hingegen konnten bisher nur die Verneuil Methode [117, 119–121, 140] für kleine Kristalle sowie das Floating Zone Verfahren (*FZ*) [93, 96, 102, 103, 111–113, 115, 118, 122, 125, 137, 141] und das Edge Defined Film Fed Growth Verfahren (*EFG*) [97, 101] für größere Kristalle erfolgreich angewendet werden. Im Jahr 2000 wurden erstmals  $Ga_2O_3$  Einkristalle mit dem Czochralski-Verfahren gewachsen [110]. Seitdem wurde das Czochralski Verfahren in weiteren Arbeiten erfolgreich angewendet [35, 90, 92, 136, 142, 143]. Die Messungen dieser Arbeit wurden an Kristallen nach [142] durchgeführt.

Für die  $\beta$ - $Ga_2O_3$ (100)-Fläche sollen die Ergebnisse, neben Informationen zur Oberflächenqualität, auch als Vergleich zu den Messungen von *Lovejoy et al.* [125] dienen. Dies ist von besonderem Interesse, da die in [125] verwendeten Kristalle mittels des Floating Zone Verfahrens hergestellt wurden und so ein Vergleich beider Wachstumsmethoden möglich wird. Die Präparationsmethoden waren in dieser und benannter Arbeit nahezu identisch.

$\beta$ - $Ga_2O_3$  wächst in einer flächenzentriert monoklinen Einheitszelle, die von vier Formeleinheiten  $Ga_2O_3$  gebildet wird, mit der Raumgruppe  $C2/m$  [126, 144]. Die Gitterparameter sind  $a = 12.214 \text{ \AA}$ ,  $b = 3.0371 \text{ \AA}$  und  $c = 5.7981 \text{ \AA}$  sowie  $\beta = 103.83^\circ$  (siehe Abbildung 4.1) [125, 126]. Die Bindungen im Kristall sind nahezu ionisch mit nur kleinen Anteilen einer kovalenten Bindung [73].

Im Volumen sind die Sauerstoffionen in einer verzerrten, kubisch dicht gepackten Struktur angeordnet [126]. Es können chemisch verschiedene Ionen unterschieden werden. So sind  $Ga_I^{3+}$  Ionen von einem verzerrten Tetraeder aus einem  $O_I^{2-}$  Ion, zwei  $O_{II}^{2-}$  Ionen sowie einem  $O_{III}^{2-}$  Ion umgeben.  $Ga_{II}^{3+}$  Ionen hingegen sind von einem verzerrten Oktaeder aus zwei  $O_I^{2-}$  Ionen, einem  $O_{II}^{2-}$  Ion und zwei  $O_{III}^{2-}$  Ionen umgeben. Die Tetraeder berühren sich in [010]-Richtung nur mit anderen Tetraedern und in den anderen Richtungen mit Oktaedern. Die Oktaeder hingegen berühren sich nur mit Oktaedern in [010]- und [102]-Richtung. Die Eckpunkte der Oktaeder werden entlang der [010]-Richtung von jeweils zwei  $O_I^{2-}$  Ionen, drei  $O_{II}^{2-}$  Ionen und einem  $O_{III}^{2-}$  Ion gebildet. Die Eckpunkte der Tetraeder bilden zwei  $O_{II}^{2-}$  Ionen entlang der [010]-Richtung. Die anderen Eckpunkte sind besetzt mit jeweils einem  $O_I^{2-}$  sowie einem  $O_{III}^{2-}$  Ion [126]. Die Einheitszelle mit der Darstellung der beiden möglichen Oberflächenterminierungen für die (100)- sowie für die (001)-Fläche sind in Abbildung 4.1 gezeigt.

Theoretische Betrachtungen zur Struktur der obersten Lage verschiedener niedrigindizierter Oberflächen wurden von *V. M. Bermudez* in [144] durchgeführt und sollen die Grundlage für die Analyse der hier durchgeführten Messungen bilden. Ferner werden in benannter Arbeit Relaxationen für die jeweiligen Oberflächenatome gefunden. Diese sollen mit den Messungen überprüft werden. Es sei angemerkt, dass es ebenfalls theoretische Berechnungen zu den Positionen der Oberflächenatome in [145, 146] gibt. Die berechneten Positionen unterscheiden sich jedoch zu den hier verwendeten Positionen im Hundertstel- $\text{\AA}$  Bereich, sodass auf eine gesonderte Dis-



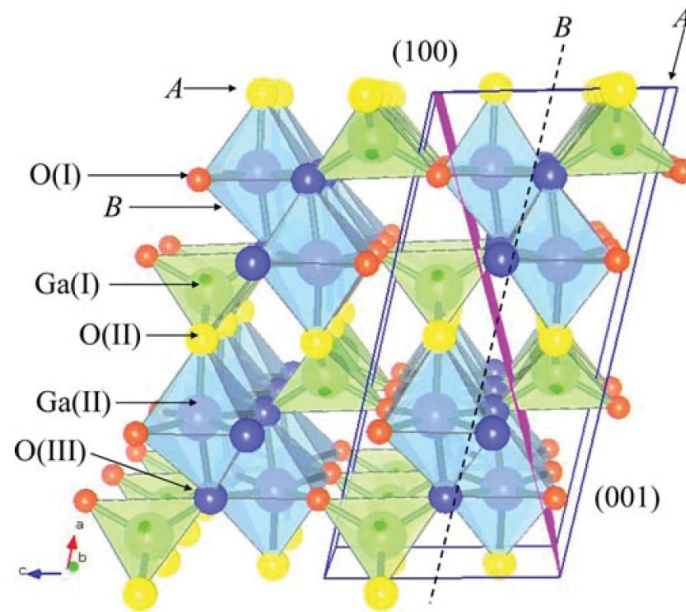


Abbildung 4.1: Volumeneinheitenzelle eines  $\beta$ - $Ga_2O_3$ -Kristalls mit den eingezeichneten Flächen (100) und (001), mit den beiden jeweils möglichen Oberflächenterminierungen A und B (Bild entnommen aus [144]).

kussion verzichtet wird.

Die genauen Positionen für einzelne Ionen können zum Beispiel aus [126, 144, 145, 147] entnommen und über Symmetrien auf den Volumenkristall ausgedehnt werden. Auf diese Weise erhält man die für die jeweiligen Terminierungen der Fläche nötigen Ionenpositionen.

## 4.1 Die $\beta$ - $Ga_2O_3(100)$ -Fläche

### 4.1.1 Experimentelle Grundlagen

Die ersten Untersuchungen dieser Arbeit wurden an der  $\beta$ - $Ga_2O_3(100)$ -Fläche durchgeführt. Durch die monokline Struktur besteht eine starke Dominanz der Spaltung in dieser Richtung [90, 96, 103, 110, 111, 137, 140, 141, 148], was insbesondere bei der Diskussion der Ergebnisse für die (001)-Fläche interessant sein wird. Indizien dafür, dass die (100)-Fläche bei Spaltung und Wachstum bevorzugt wird, lassen sich auch in anderen Arbeiten finden. In [135, 136] wurden mittels MOVPE dünne  $Ga_2O_3$  Filme auf  $MgO(100)$ - bzw. auf  $\beta$ - $Ga_2O_3$ -Substraten (mittels FZ gewachsen) aufgewachsen. Durch Untersuchungen mit XRD (Röntgen Diffraktometrie, X-ray Diffraction) und HRTEM (Hochaufgelöster Transmissions-Elektronen-Mikroskopie, High Resolution Transmission Electron Microscopy) sowie AFM (Raster-Kraft-Mikroskopie, Atomic Force Microscopy) und SEM (Scanning Electron Microscopy, Raster-Elektronen-Mikroskopie) wurde gezeigt, dass diese Filme als (100)-Fläche wachsen. Es wurden mit Plasmaunterstützter MBE  $\beta$ - $Ga_2O_3$  Filme

auf einem  $Al_2O_3(0001)$ - [95, 130], einem  $Si(100)$ - [130], einem  $MgO(100)$ - sowie einem  $\beta-Ga_2O_3(100)$ -Substrat (mittels *FZ* gewachsen) [93] aufgewachsen. Auch hier konnte über XRD-, RHEED- (Reflection High Energy Electron Diffraction) und SEM-Messungen das Wachstum in (100)-Orientierung festgestellt werden. Ferner wurden Anteile der metastabilen  $\alpha-Ga_2O_3(100)$ -Phase [126, 128] nachgewiesen, die erst bei hohen Aufdampftemperaturen von  $T = 800$  K unterdrückt wurden. Dies ist jedoch in Einklang mit [126, 144], wonach die  $\alpha$ -Phase für niedrige Wachstempereaturen sogar die zunächst stabilere Phase ist, sich für hohe Temperaturen jedoch ausschließlich die  $\beta$ -Phase ausbildet.

Die selben Befunde fanden sich in [128, 139]. In den dort durchgeführten Messungen mit einem STM (Raster-Tunnel-Mikroskop, Scanning Tunneling Microscope) konnte gezeigt werden, dass auf einer  $CoGa(001)$ -Fläche unter Sauerstoffzugabe bei gleichzeitigem Heizen des Kristalls lange Inselketten von  $\beta-Ga_2O_3(100)$  wachsen. Das Spalten von Einkristallen entlang der (100)-Fläche lieferte Oberflächen hoher Güte [102, 103, 110, 118, 125, 140, 141].

Für die  $\beta-Ga_2O_3(100)$ -Fläche werden in [144] zwei mögliche Terminierungen besprochen. Die *A*-Terminierung besteht aus Reihen von  $O_{II}^{-2}$  Ionen entlang der (010)-Richtung, die jeweils Bindungen mit zwei  $Ga_I^{3+}$  Ionen besitzen. Beide Ionensorten sind einfach ungesättigt, das bedeutet ein Bindungspartner fehlt jeweils zum Volumenzustand. Der Bindungszustand und die Umgebung für die  $O_I^{-2}$ ,  $O_{III}^{-2}$  und  $Ga_I^{3+}$  Ionen sind wie im Volumen. Die *B*-Terminierung wird durch Reihen von  $Ga_I^{3+}$  und  $O_{III}^{-2}$  Ionen aufgespannt. Die Bindungen sind jeweils einfach ungesättigt. Der Bindungszustand und die Umgebung für die  $O_I^{-2}$  und  $Ga_{II}^{3+}$  Ionen sind wie im Volumen.  $O_{II}^{-2}$  Ionen kommen in der obersten Lage nicht vor. Beide Terminierungen sind in Abbildung 4.2 dargestellt.

Für beide Terminierungen wurden in [144] Relaxationen der Atome der ersten Monolagen gefunden. Diese sollen für Lagen tiefer als die zehnte Monolage vernachlässigbar klein sein. Durch die hier verwendeten oberflächensensitiven Messmethoden sind jedoch nur die Relaxationen der obersten beiden Monolagen von Interesse. Welchen Einfluss diese auf die Streuerverteilungen in Simulationen haben, soll an anderer Stelle diskutiert werden (siehe Abschnitt „Ergebnisse und Diskussion“). Für die *A*-Terminierung sind die Absolutbeträge der Relaxationen im Bereich  $\delta(z) < 0.3$  Å und  $\delta(x, y) < 0.25$  Å. Dabei bezeichnet  $\delta(x, y)$  die Relaxation in der Oberflächenebene, wobei nicht klar ist, ob es sich um die [010]-, die [001]- oder eine dazwischen liegende Richtung handelt. Es wird hier und im folgenden davon ausgegangen, dass es sich um eine Verschiebung entlang der [001]-Richtung handelt. Für die *B*-Terminierung wurden von *V. M. Bermudez* Relaxationen  $\delta(z) < 0.2$  Å und  $\delta(x, y) < 0.2$  Å berechnet. Die kleineren Relaxationen gegenüber der *A*-Terminierung spiegeln sich auch darin wider, dass die in [144] berechnete Oberflächenenergie für die *B*-Terminierung um knapp einen Faktor zwei kleiner ist, als die der *A*-Terminierung. Demnach ist sie thermodynamisch die stabilere Struktur. Die gesteigerte Stabilität wird damit erklärt, dass die *A*-Terminierung einen größeren Anteil an ungesättigten Bindungen in der Oberfläche besitzt. Dieser Befund ist in guter Übereinstimmung mit Experimenten an dünnen  $\beta-Ga_2O_3$  Filmen, wie zum Beispiel in [128, 139].

Untersuchungen der Oberflächenterminierung wurden in [125] an einem mit *FZ* gewachsenen Kristall durchgeführt. Es wurden in STM-Messungen Stufenkanten mit der Höhe von  $(5.9 \pm 0.2)$  Å gefunden, was in etwa einer halben Einheitszelle in (100)-Richtung entspricht und zunächst im Einklang mit [102, 103, 137] ist. Auch dort wurden Stufenkanten mit einer Höhe von ca. 6 Å an Kristallen gewachsen mit



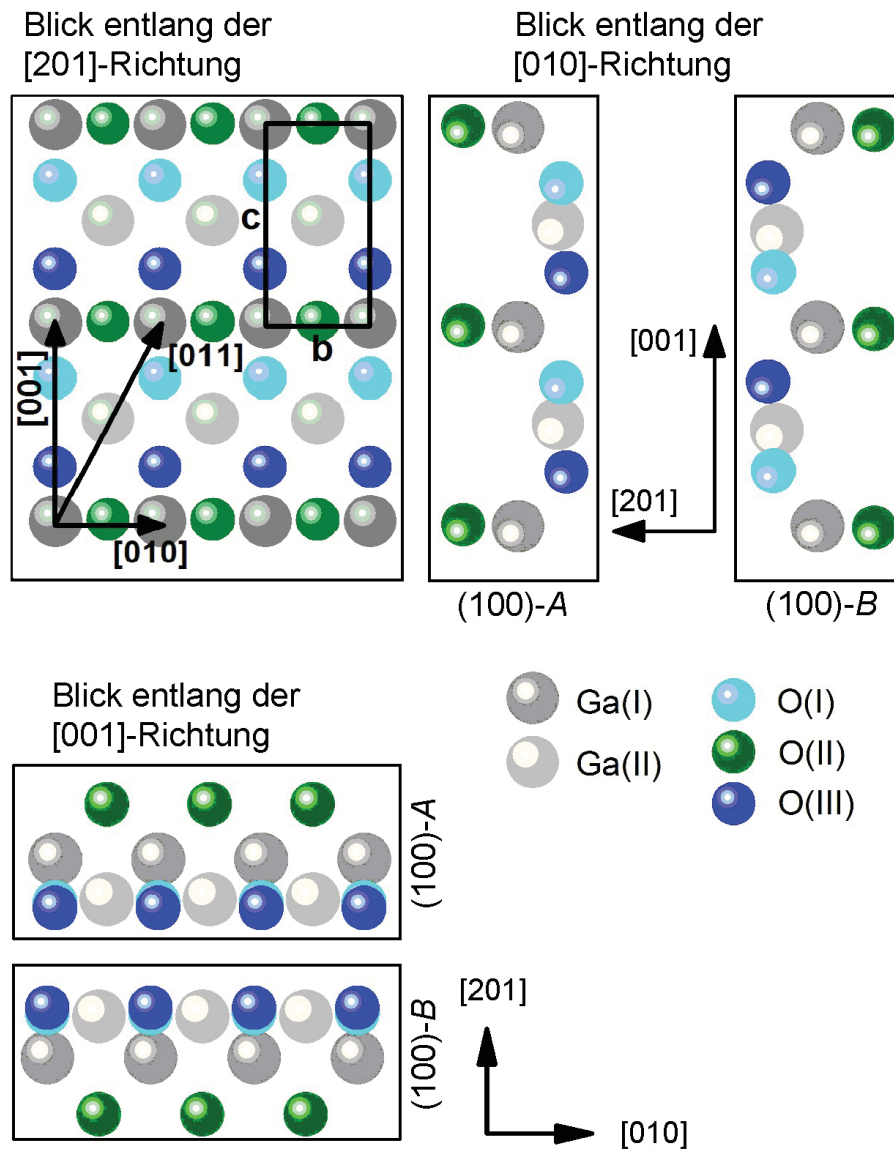


Abbildung 4.2: Darstellung der Struktur der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche in Draufsicht sowie Seitenansichten für die beiden möglichen Terminierungen A und B.

*FZ* bzw. an mit MBE gewachsenen Filmen beobachtet. Zusätzlich dazu wurden in [125] bei höherer Auflösung Kanten verschiedener Höhen gefunden ( $1.5 \text{ \AA}$ , entspricht dem Übergang von *B*- zu *A*-Terminierung, bzw.  $4.4 \text{ \AA}$ , entspricht dem Übergang von *A*- zu *B*-Terminierung), die sich jeweils Terrassen mit unterschiedlicher Größe zuordnen ließen. So wurde geschlussfolgert, dass auf der Oberfläche beide Terminierungen zu finden sind. Die größeren Terrassen wurden mit der *B*-, die kleineren Terrassen mit der *A*-Terminierung identifiziert. Es wurde argumentiert, dass dies prinzipiell im Einklang mit den Berechnungen aus [144] sei, da die energetisch stabilere Terminierung auf den größeren Terrassen zu finden ist. Der Unterschied zu den Messungen anderer Arbeiten wird durch die höhere Auflösung des verwendeten STMs begründet.

In dieser Arbeit wurden Messungen an mit dem Czochralski-Verfahren gewachsenen Kristallen durchgeführt und daraus die Oberflächenterminierung als Vergleich zu [125] bestimmt. Um den Vergleich zu ermöglichen, wurde die Probenpräparation analog zu [125] durchgeführt.

### 4.1.2 Probenpräparation

Die Messungen wurden an  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  Kristallen, gewachsen mit dem Czochralski-Verfahren am *Leibniz Institut für Kristallzüchtung Berlin*, durchgeführt. Die Kristalle wurden *in situ* an Luft gespalten. Anfangs wurden als Targethalter Tantal-Blöcke verwendet. Positioniert und fixiert wurden die Kristalle dabei durch kleine Metallplättchen, die an jeweils zwei Ecken den Kristall halten (siehe Abbildung 4.3).



Abbildung 4.3: Probenhalter für die Galiumoxid-Kristalle. Gezeigt ist der Halter ohne Kristall sowie die Halterung (Metallplättchen) für den Kristall.

Es zeigte sich jedoch, dass sich die Kristalle bei hohen Ausheiltemperaturen schon nach geringen Ausheilzeiten von einigen Minuten zersetzten (siehe Abbildung 4.4). Man erkennt deutlich eine starke Trübung des ansonsten klaren, transparenten Kristalls. Ebenfalls haben sich Löcher gebildet, die nicht nur oberflächlich sind, sondern den Kristall in voller Dicke durchsetzen. Grund scheinen chemische Reaktionen mit dem Tantalblock zu sein, insbesondere die Aufnahme von Sauerstoff aus dem Galiumoxid-Kristall [148]. Nach [148] wurde auf einen Block aus Platin als Substrathalter gewechselt. Die Temperaturstabilität der Kristalle konnte so verbessert und die Kristalle bei bis zu  $T = 1300$  K ausgeheilt werden. Die Temperatur wurde über ein an eine Schraube am Tantal- bzw. Platin-Block befestigtes Thermoelement kontrolliert. Zur Isolation gegen die Umgebung, befand sich das Thermoelement in einem Isolatorröhrchen. Waren die Galiumoxid-Kristalle auf dem Platin-Block montiert, wurden sie in die UHV-Kammer überführt (siehe Abbildung 4.5 b)).

Da Informationen über die Oberflächenterminierung des Kristalls gewonnen werden sollen, waren die Möglichkeiten zur Kristallpräparation drastisch eingeschränkt. So fand die Präparation des Kristalls analog zu [35, 125] ausschließlich über das Ausheilen des Kristalls im UHV statt. Der Basisdruck in der Kammer belief sich dabei auf  $p \sim 10^{-8} - 10^{-10}$  mbar. Während des Ausheilvorgangs stieg der Druck auf  $p \sim 10^{-7} - 10^{-8}$  mbar.

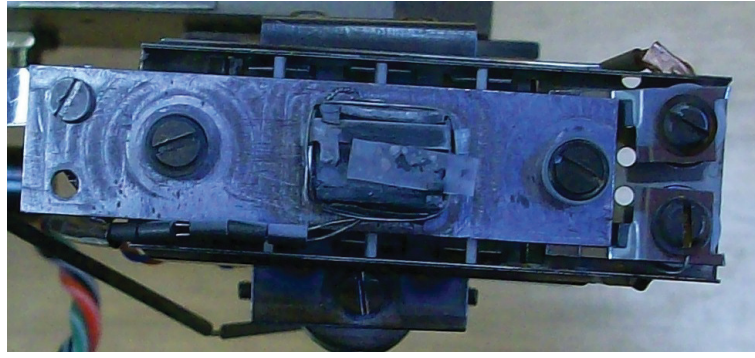


Abbildung 4.4: Foto des zersetzten Kristalls direkt nach dem Ausbau aus der UHV-Kammer.

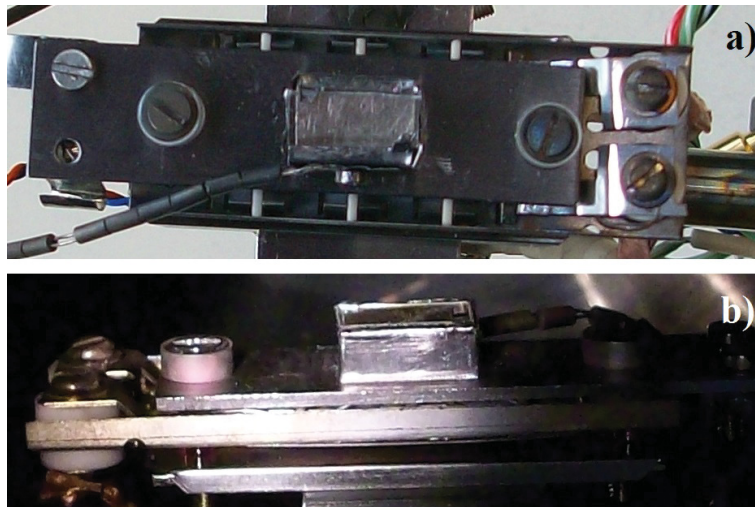


Abbildung 4.5: Auf dem Probenhalter montierter Kristall: a) vor dem Einbau; b) in der UHV-Kammer.

Durch regelmäßige Messungen von Streuverteilungen an der Oberfläche, konnten die Fortschritte der Oberflächenqualität mit steigender Ausheiltemperatur und -zeit dokumentiert werden. Das ist in Abbildung 4.6 für die Streuung von  $\text{H}_2$ -Projektilen für eine Energie von 500 eV und einem Einfallswinkel  $\Phi_{in} = 0.84^\circ$  zu sehen. Letztlich wurden als passende Parameter zur Erzeugung einer atomar glatten Oberfläche Ausheiltemperaturen von  $T = 1000 - 1300$  K bei Ausheilzeiten von bis zu  $t = 60$  min gefunden, insbesondere ohne das Erzeugen einer Sauerstoff-Atmosphäre. Demnach liegen stark reduzierende Bedingungen vor. Beim Überprüfen des Restgasspektrums mit dem QMS während des Ausheilprozesses konnte jedoch kein nennenswerter Anstieg des Galium-, noch des Sauerstoffpartialdrucks festgestellt werden.

Wie man anhand von Abbildung 4.6 sehen kann, konnten auf diese Weise atomar glatte Kristalloberflächen erzeugt werden. Im Vergleich zu [125] sind die Parameter zur Probenpräparation nahezu gleich. Auch dort wurden die verwendeten Kristalle bei  $T = 800 - 1000^\circ\text{C}$  für 20-200min im UHV ausgeheilt. Ein direkter Vergleich der Messergebnisse ist also möglich.



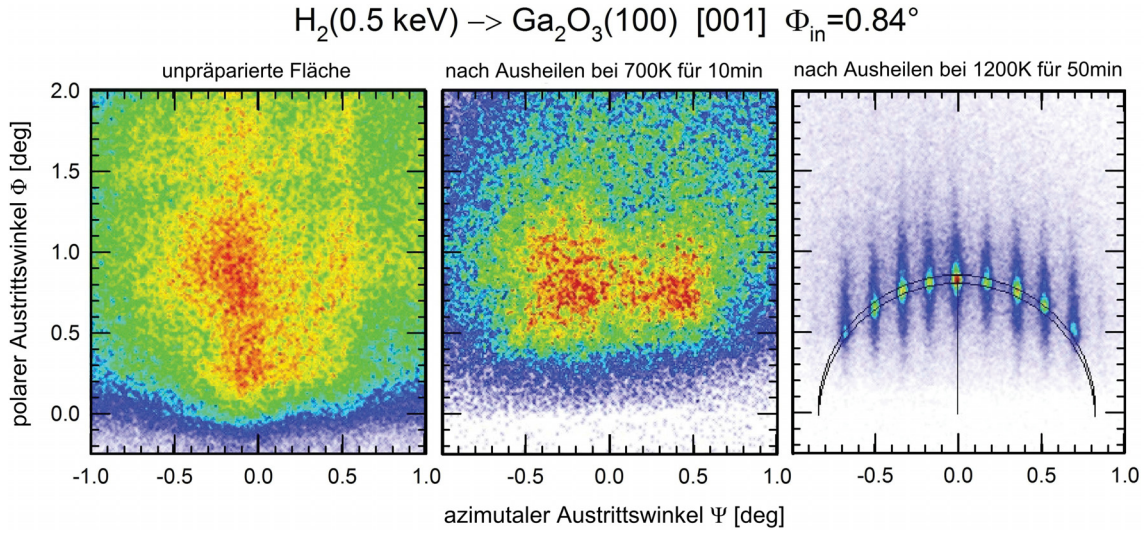


Abbildung 4.6: Abbildung zum Fortschritt der Präparation der  $\beta-Ga_2O_3(100)$ -Fläche, überprüft anhand der Streuung von  $H_2$ -Molekülen mit einer Energie von  $E = 500 \text{ eV}$  unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.84^\circ$ . Zu sehen ist die Evolution von einer kompletten Ausleuchtung des MCPs, was für eine sehr raue Oberfläche spricht, über eine Verbesserung der Oberflächenordnung beim Ausheilen im UHV bei  $T = 700 \text{ K}$  für 10 min bis hin zu einer atomar glatten Oberfläche für das Ausheilen bei  $T = 1200 \text{ K}$  für 50 min (Ursprüngliche Abbildung aus [35]).

### 4.1.3 Ergebnisse und Diskussion

Es wurde zunächst überprüft, inwieweit die Symmetriebreiten einzelner niedrig-indizierter Kristallrichtungen der (100)-Fläche mit den theoretischen Erwartungen übereinstimmen. Für die (100)-Fläche war es möglich, Streuverteilungen entlang vier verschiedener niedrig-indizierter Richtungen aufzunehmen. Dabei handelt es sich um die [010]-, die [001]-, die [011]- sowie die [012]-Richtung. Für die Bestimmung der Symmetriebreite einer Kristallrichtung, muss entlang der Richtung senkrecht zu dieser Kristallrichtung gestreut werden. Die Richtungsangabe kann für Kristallrichtungen abweichend von den Hauptachsen unter Umständen recht komplex werden. Der Einfachheit halber, wird hier und im folgenden mit der Kristallrichtung  $[uvw]$  die Richtung senkrecht zur Symmetriebreite  $d_{[uvw]}$  gemeint sein.

Beispielmessungen für die Beugung entlang der Richtungen [010], [001], [011] und [012] mit den entsprechenden Projektionen auf den azimutalen Austrittswinkel sind für die Streuung von  $H_2$ -Molekülen mit einer Energie von  $E_0 = 400 \text{ eV}$  bei Einfallswinkeln zwischen  $0.89^\circ \leq \Phi_{in} \leq 0.98^\circ$  in Abbildung 4.7 gezeigt. Man beachte die geringe Breite der Beugungslinien, verbunden mit einer größtenteils nur kleinen polaren Aufstreuung. Ein Vergleich der Symmetriebreiten erlaubt die graphische Darstellung in Abbildung 4.8.

Die Symmetriebreiten der einzelnen Richtungen sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Die Literaturangaben sind aus den Gitterparametern  $b$  und  $c$  berechnete Größen, wobei diese aufgrund der rechteckigen Einheitszelle nach

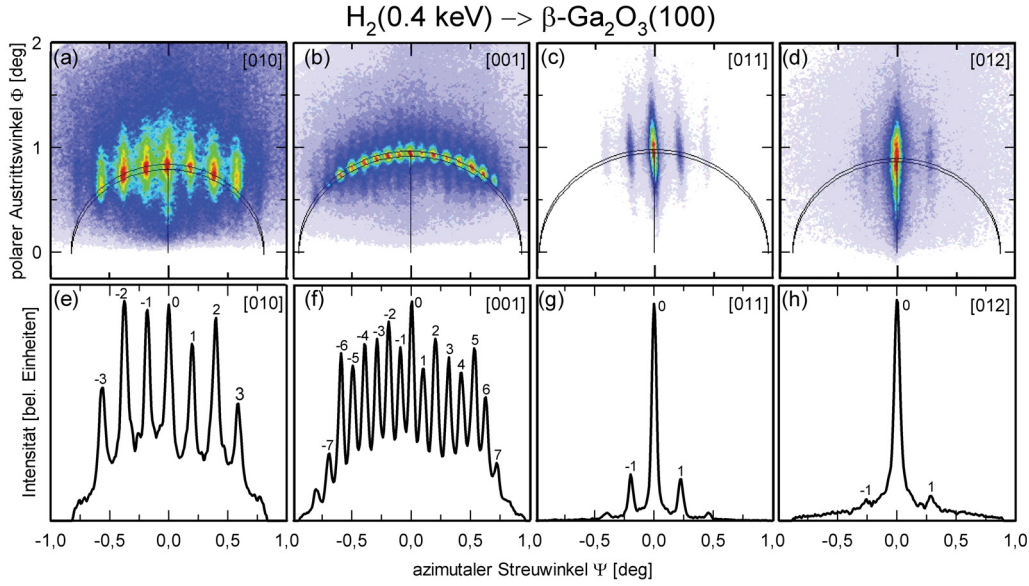


Abbildung 4.7: Beispielmessungen entlang der vier verschiedenen Kristallrichtungen, entlang derer gemessen werden konnte ([001], [010], [011], [012]) in (a) - (d), sowie die jeweiligen Projektionen auf den azimuthalen Ablenkungswinkel (e) - (h). Abbildung aus [35] entnommen.

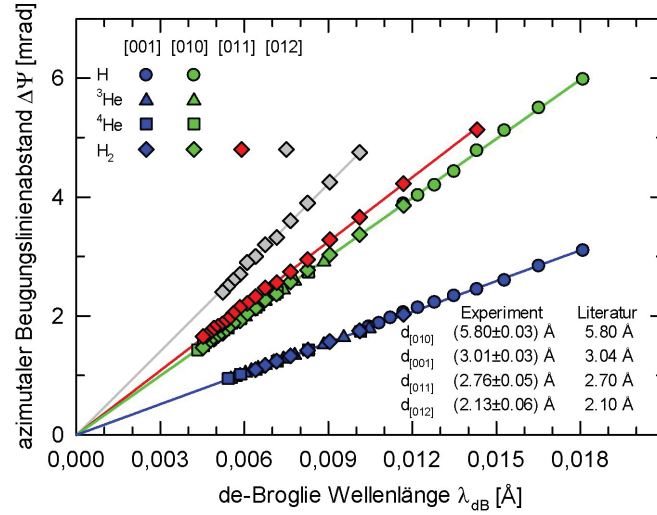
$$d_{0vw} = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{v}{b}\right)^2 + \left(\frac{w}{c}\right)^2}}$$

berechnet werden können. Man findet also für die [001]- und die [010]-Richtung hervorragende, für die [011]- und die [012]-Richtung sehr gute Übereinstimmungen mit den zu erwartenden Größen. Interessant ist dabei, dass die Gitterkonstanten des Volumenkristalls zu messen sind. Dies wird in der auswertenden Diskussion wieder aufgegriffen werden.

	Experiment	Literatur
[001]	$(5.80 \pm 0.03) \text{ \AA}$	$5.80 \text{ \AA}$
[010]	$(3.01 \pm 0.03) \text{ \AA}$	$3.04 \text{ \AA}$
[011]	$(2.76 \pm 0.05) \text{ \AA}$	$2.69 \text{ \AA}$
[012]	$(2.13 \pm 0.06) \text{ \AA}$	$2.10 \text{ \AA}$

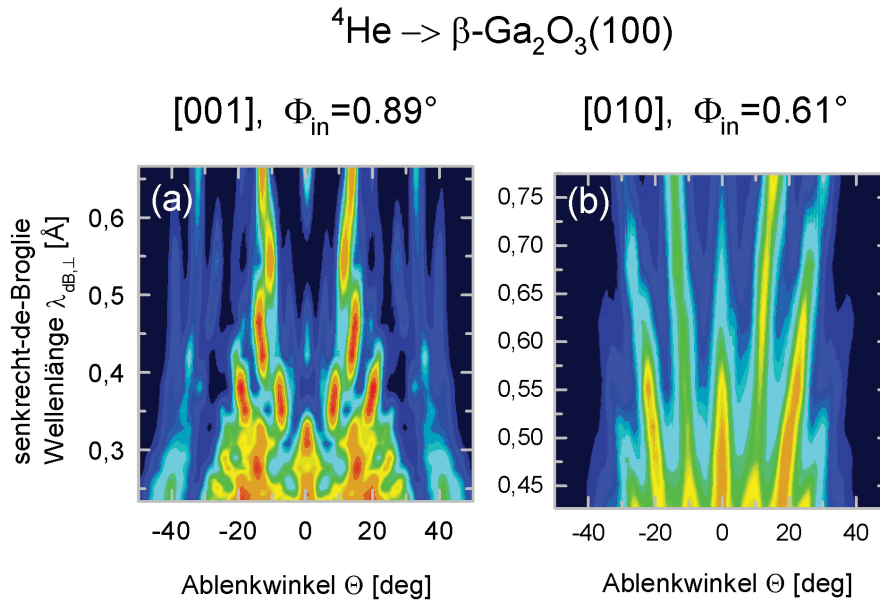
Tabelle 4.1: Auswertung der Kanalbreiten und Vergleich mit Literaturwerten für die  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche.

Die Symmetriebreiten stimmen sehr gut mit den Literaturwerten überein. Nun enthalten diese jedoch noch keinerlei Informationen über die Struktur innerhalb der Einheitszelle. Für die weitere Auswertung sollen zunächst Beugungskarten entlang der beiden Hauptrichtungen [001] und [010] für die Streuung mit  $^4\text{He}$ -Projektilen



Abbildungung 4.8: Zusammenstellung der Auswertung der aziumtalen Abstände der Beugungslinien in Abhängigkeit zur de-Broglie Wellenlänge. Gezeigt sind die Messungen mit  $^4\text{He}$ ,  $^3\text{He}$ ,  $\text{H}$ - sowie  $\text{H}_2$ -Projektilen für die  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche. Unten rechts findet man die aus den Messungen berechneten Kanalbreiten den Literaturwerten gegenübergestellt.

unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.89^\circ$  bzw.  $\Phi_{in} = 0.61^\circ$  betrachtet werden (siehe Abbildung 4.9).



Abbildungung 4.9: Experimentelle Beugungskarten gemessen an der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche entlang der  $[001]$ - bzw. entlang der  $[010]$ -Richtung. Gemessen wurde mit  $^4\text{He}$ -Projektilen unter Einfallswinkeln von  $\Phi_{in} = 0.89^\circ$  bzw.  $\Phi_{in} = 0.61^\circ$ .

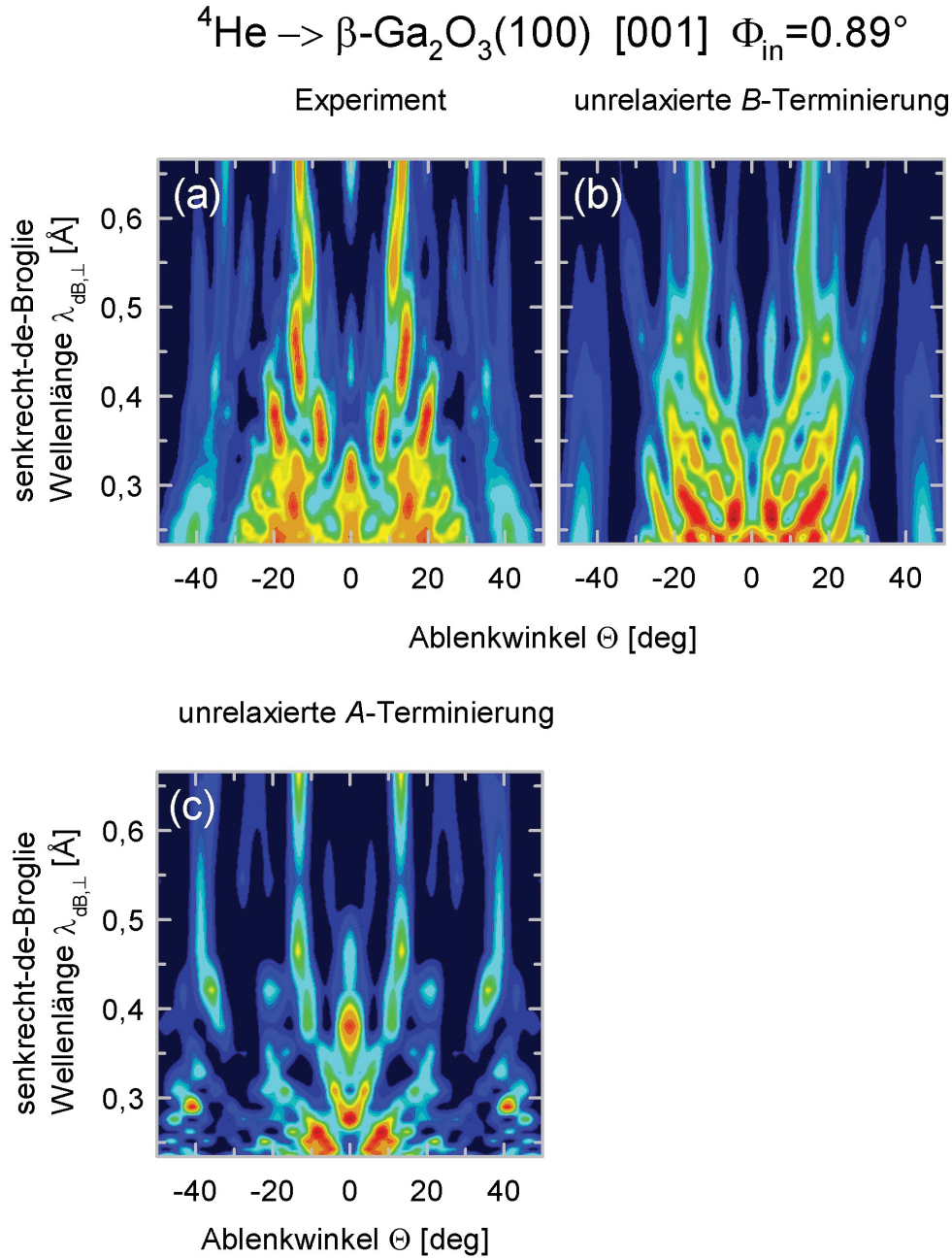


Abbildung 4.10: Vergleich der Beugungskarten (a) aus dem Experiment mit Simulationen auf Grundlage der unrelaxierten Struktur der (b) *B*- bzw. (c) *A*-Terminierung für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.89^\circ$  entlang der  $[001]$ -Richtung.

Um beide Terminierungen vergleichen zu können, wurden zunächst Simulationen der Beugungskarten entlang der  $[001]$ -Richtung auf Basis der Ionen-Positionen aus  $[144]$  für die *A*-, wie für die *B*-Terminierung durchgeführt. Der Vergleich zwischen der Messung und den Simulationen auf Basis der *A*-, bzw. der *B*-Terminierung ist in Abbildung 4.10 dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass die Simulation der Beugungskarte der *A*-Terminierung ein vollkommen anderes Bild, als die Messung, liefert. Besonders auffällig ist zum Einen die deutlich höhere Intensität der nullten Ordnung für einen Bereich der senkrechten



de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{dB\perp} \leq 0.4 \text{ \AA}$ . Zum Anderen haben die hohen Beugungsordnungen im Bereich des Regenbogenwinkels im gesamten senkrecht-de-Broglie Wellenlängen Bereich eine höhere Intensität, als es für die gemessenen Beugungsspektren der Fall ist. Insgesamt kann die experimentelle Beugungskarte nur ungenügend durch die Simulationen auf Basis der *A*-Terminierung wiedergegeben werden. Die *B*-Terminierung hingegen kann den Intensitätsverlauf der einzelnen Beugungsordnungen sehr gut wiedergeben, insbesondere für einen senkrecht-de-Broglie Wellenlängen Bereich von  $\lambda_{dB\perp} \leq 0.4 \text{ \AA}$ . Jedoch ist die Intensität der nullten Beugungsordnung über den gesamten Bereich der senkrechten de-Broglie Wellenlänge nur unzureichend reproduziert.

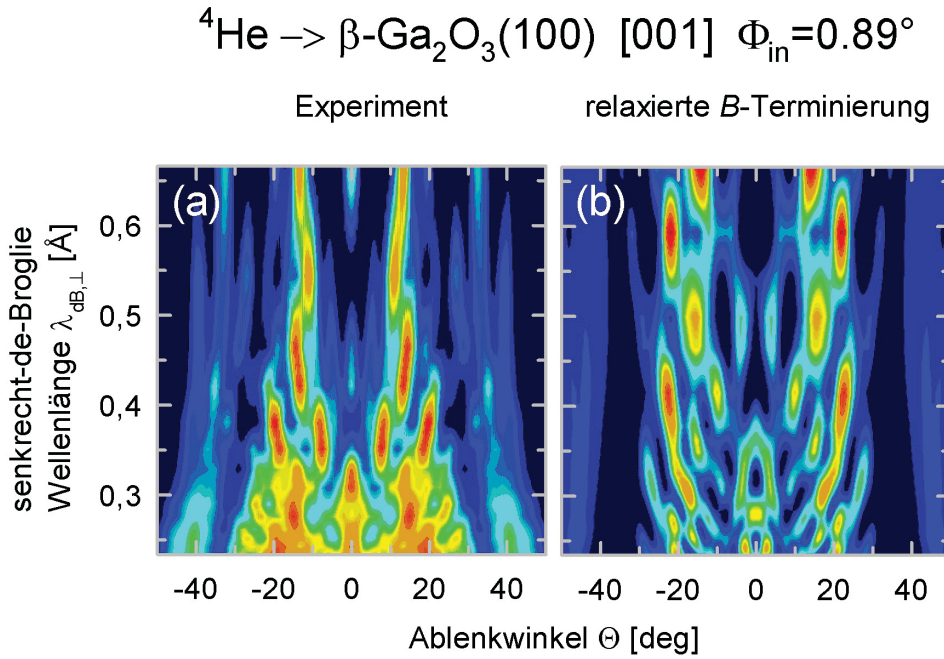


Abbildung 4.11: Vergleich der Beugungskarten (a) aus dem Experiment mit Simulationen auf Grundlage der Struktur der (b) relaxierten *B*-Terminierung für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.89^\circ$  entlang der  $[001]$ -Richtung.

Durch die bessere Übereinstimmung zwischen dem Experiment und den Simulationen der Beugungskarte für die *B*-Terminierung, wurde überprüft, inwieweit sich die Simulation ändert, wenn die relaxierte *B*-Terminierung als Grundlage verwendet wird. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.11 gezeigt.

Man erkennt, dass die Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation nicht verbessert werden konnte. Auch hier ist die nullte Beugungsordnung im Vergleich zur Messung kaum ausgeprägt. Die Intensität der fünften Beugungsordnung ist im Bereich um  $0.6 \text{ \AA}$  zu stark betont. Insgesamt sind die Intensitätsverläufe aus den Simulationen, gerade im Bereich der senkrechten de-Broglie Wellenlänge von  $\leq 0.5 \text{ \AA}$ , nur bedingt in den Messungen wiederzufinden.

Die Messungen konnten von keiner der Terminierungen in den Simulationen mit



genügender Präzision beschrieben werden. Dennoch zeigte die  $B$ -Terminierung zumindest in Ansätzen Intensitätsverläufe, in denen man die der Messungen erkennen konnte. Somit lag es nahe zu versuchen, die Ionenpositionen anzupassen, sodass die Übereinstimmung der Simulation und des Experimentes verbessert wurde. Eine Simulation der Beugungskarte auf Grundlage einer abgewandelten Struktur ist in Abbildung 4.12 zu sehen. Obwohl auch hier die nullte Beugungsordnung für den Bereich von  $\lambda_{dB\perp} \geq 0.55$  Å nicht zufriedenstellend wiedergegeben wird, zeigen die Intensitätsverläufe für den Bereich der senkrechten de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{dB\perp} < 0.55$  Å exzellente Übereinstimmungen mit dem Experiment. Gerade der kritische Bereich der unrelaxierten  $B$ -Terminierung  $\lambda_{dB\perp} \leq 0.4$  Å zeigt ein fast identisches Bild zu den Messungen. Die Größe der Relaxationen war dabei im Maximum für die Ionen der obersten Lage  $|\delta_{[100]}| \leq 0.15$  Å und  $|\delta_{[001]}| \leq 0.10$  Å. Das demonstriert nochmals die hohe Sensitivität der FAD-Messungen auf kleinste Verschiebungen der Oberflächenionen/-atome. Die variierte  $B$ -Terminierung soll im folgenden mit  $B^*$  bezeichnet werden.

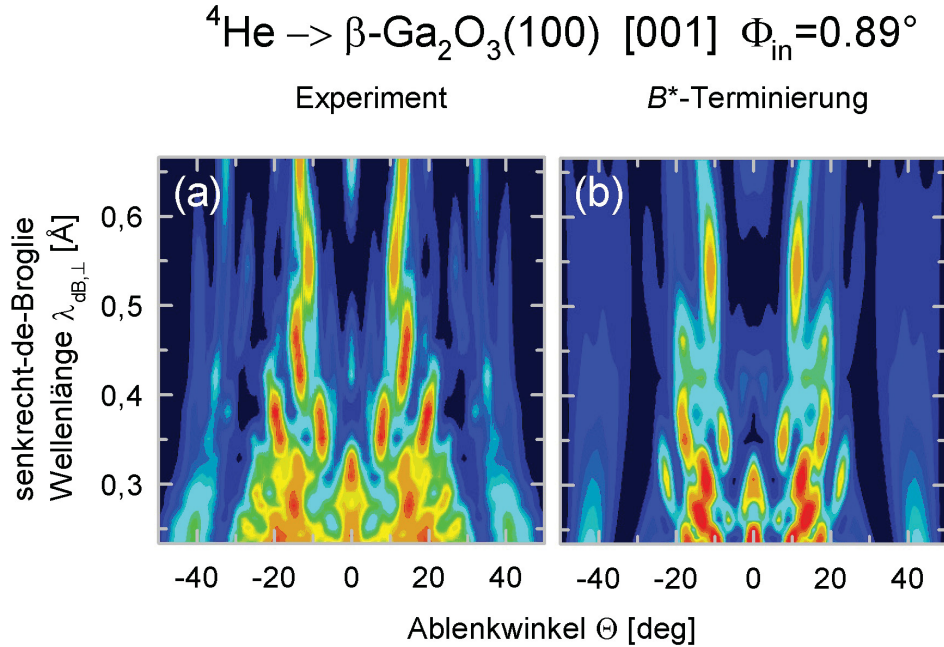


Abbildung 4.12: Vergleich der Beugungskarten (a) aus dem Experiment mit Simulationen auf Grundlage der Struktur der (b)  $B^*$ -Terminierung für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.89^\circ$  entlang der  $[001]$ -Richtung.

Ein Bild der  $B^*$ -Terminierung für den Blick entlang der  $[001]$ -Richtung ist in Abbildung 4.13 gezeigt. Dort eingezeichnet sind ebenfalls die unrelaxierten Positionen (schwarze Kreise) sowie die relaxierten Positionen nach  $[144]$  (Kreise mit blasser Färbung). Interessant ist zu bemerken, dass die in dieser Arbeit ermittelten Relaxationen teilweise im Vergleich zu den Berechnungen von *V. M. Bermudez* in  $[144]$  in die entgegengesetzte Richtung stattfinden.

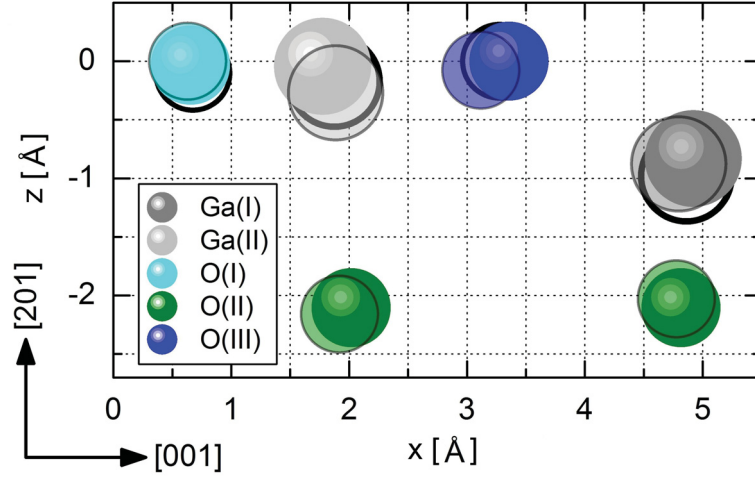


Abbildung 4.13: Darstellung der Ionpositionen mit Blickrichtung entlang der  $[010]$ -Richtung für die unrelaxierte  $B$ -Terminierung (schwarze Kreise), die relaxierte  $B$ -Terminierung nach *Bermudez* [144] (Kreise mit blasser Farbe) und die  $B^*$ -Terminierung (ausgefüllte Kugeln).

Es war zu überprüfen, ob das so entwickelte Strukturmodell neben der Beugung auch die klassischen Regenbögen in Simulationen beschreiben kann. Entsprechende Simulationen wurden für die Streuung mit  $^4\text{He}$ -Projektilen durchgeführt. Vier Beispiele für die Energien von  $E_0 = \{12, 28, 45, 60\}$  keV (Einfallswinkel:  $\Phi_{in} = 0.93^\circ$ ) werden in Abbildung 4.14 gezeigt. Für einen Vergleich der Terminierungen, wurde den Abbildungen jeweils das Ergebnis der Simulationen der  $A$ -Terminierung gegenüber gestellt.

Die Intensitätsverteilungen werden für die Energien  $E_0 = \{12, 45, 60\}$  keV nahezu perfekt von den Simulationen des neuen Strukturmodells der  $B^*$ -Terminierung beschrieben. Die  $A$ -Terminierung hingegen liefert teilweise vollkommen andere Linienformen für die Streuverteilungen. Ein weiteres Vergleichskriterium ist der Regenbogenwinkel. Für die Beispielmessungen in Abbildung 4.14 liefert die  $B^*$ -Terminierung fast identische Werte zum Experiment. Die  $A$ -Terminierung hingegen erzeugt um teilweise  $10^\circ$  zu große Regenbogenwinkel. Betrachtet man sich den Verlauf der Regenbogenwinkel über den gesamten gemessenen Energiebereich (siehe Abbildung 4.15), so ergibt sich das selbe Bild.

In Abbildung 4.15 sind, neben den Verläufen der Regenbogenwinkel der Simulationen für die  $A$ - und für die  $B^*$ -Terminierung, zur Vollständigkeit auch die Verläufe der Regenbogenwinkel auf Basis der unrelaxierten sowie der nach [144] relaxierten  $B$ -Terminierung gezeigt. Man beachte den Achsenbruch auf der Ordinatenachse, um auch den Verlauf der  $A$ -Terminierung zeigen zu können. Wie in den Beispielmessungen angedeutet, liefert die  $A$ -Terminierung über den gesamten Bereich der Senkrechterenergie einen zu hohen Regenbogenwinkel. Die Differenz beträgt für manche Energien ca.  $20^\circ$ . Die Regenbogenwinkel aus den Simulationen auf Basis der nach [144] relaxierten  $B$ -Terminierung sind ebenfalls um wenige Grad zu groß, liegen jedoch wesentlich dichter zur experimentellen Kurve. Sowohl die Simulationen auf Basis der unrelaxierten  $B$ -, als auch die der  $B^*$ -Terminierung beschreiben das Experiment sehr gut. Die Kurve der Simulationen für die  $B^*$ -Terminierung ist sogar nahezu identisch mit der experimentellen Kurve. Man findet also auch hier eine gute

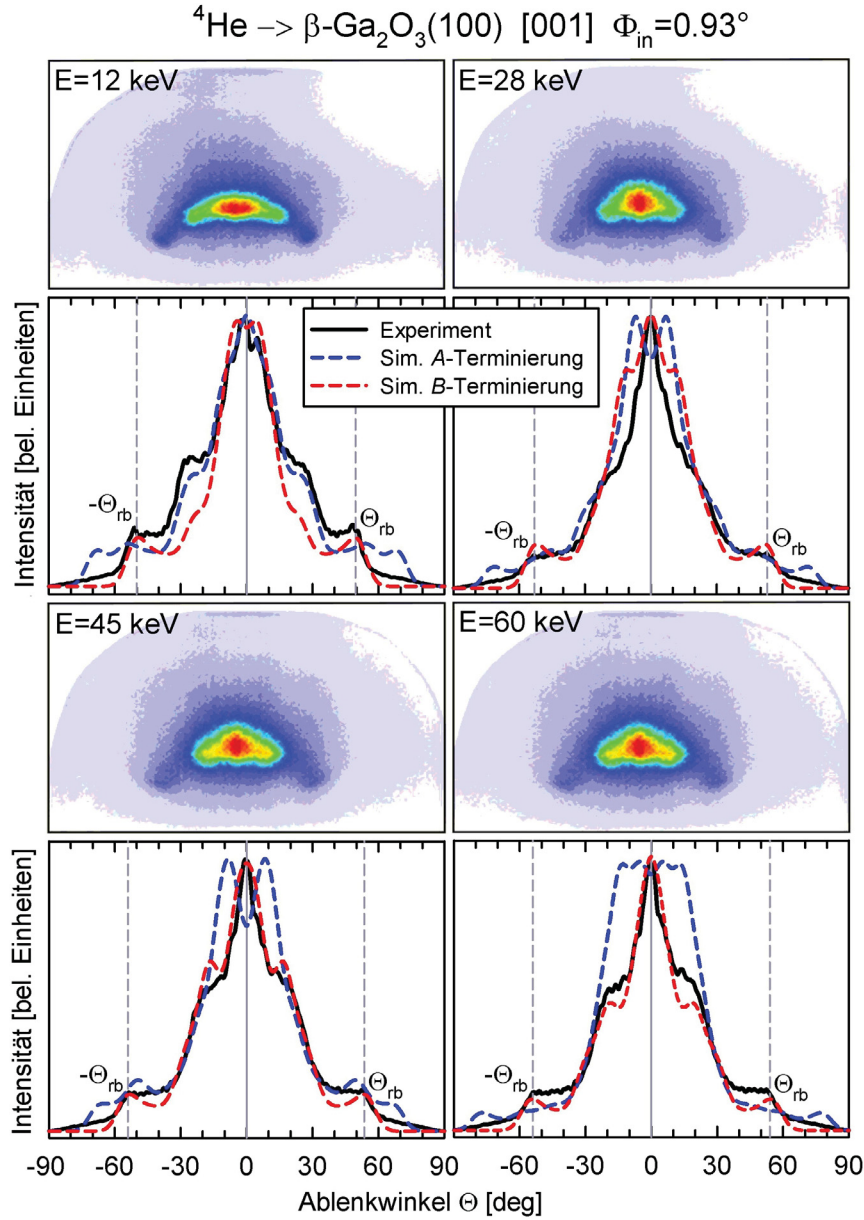


Abbildung 4.14: Gezeigt sind Messungen aus der klassischen Regenbogenstreuung, mit ihren entsprechenden Projektionen auf den Ablenkwinkel  $\Theta$ , verglichen mit Simulationen für die  $A$ - (blaue, gestrichelte Kurve) sowie für die  $B$ -Terminierung (rote, gestrichelte Kurve). Die Messungen wurden mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.93^\circ$  für die Energien  $E_0 = \{12, 28, 45, 60\}$  keV durchgeführt.

Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation für die  $B^*$ -Terminierung. Die Anpassung des Strukturmodells wurde zunächst nur für die Beugungskarte der Streuung entlang der  $[001]$ -Richtung vorgenommen. Relaxationen entlang der  $[010]$ -Richtung sind dort natürlich nicht zu erkennen. Deshalb wurde für ein vollständiges Bild die Beugungskarte für  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[010]$ -Richtung für die vier Terminierungen simuliert (siehe dazu Abbildung 4.16).

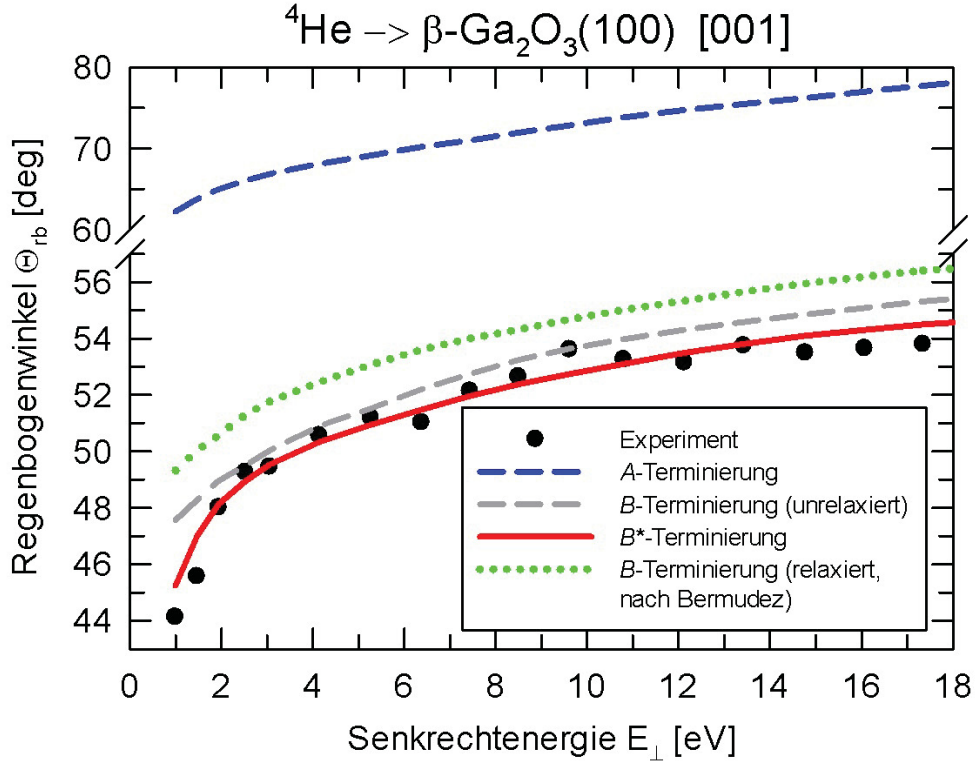


Abbildung 4.15: Darstellung der Regenbogenwinkel in Abhängigkeit zur Senkrechtenergie für die verschiedenen Terminierungen der Fläche. Es handelt sich um die Streuung entlang der  $[001]$ -Richtung mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen. schwarze Punkte: Regenbogenwinkel, aus den Messungen abgelesen; blaue, gestrichelte Kurve: Simulation der Regenbogenwinkel auf Basis der A-Terminierung; graue, gestrichelte Kurve: Simulation der Regenbogenwinkel auf Basis der unrelaxierten B-Terminierung; rote Kurve: Simulation der Regenbogenwinkel auf Basis der B\*-Terminierung; grüne, gepunktete Kurve: Simulation der Regenbogenwinkel auf Basis der nach  $[144]$  relaxierten B-Terminierung. Man beachte die Achsenunterbrechung der Ordinatenachse.

In  $[010]$ -Richtung ergibt sich für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.61^\circ$  ein ähnlicher Befund, wie für die  $[001]$ -Richtung. Auch hier wird das Experiment besser von der B-Terminierung beschrieben, wobei der Unterschied zwischen den Simulationen der A- und B-Terminierung nicht so gravierend ausfällt, wie vorher. Die B- und die relaxierte B-Terminierung können den Intensitätsverlauf der experimentellen Beugungskarte im gesamten Bereich der senkrechten de-Broglie Wellenlänge gut beschreiben. Lediglich die im Experiment nur leicht angedeutete Intensitätsmodulation der ersten Beugungsordnung ist bei beiden Varianten der B-Terminierung zu stark. Dass nahezu das selbe Bild in den Simulationen entsteht, war zu erwarten, da in  $[144]$  nur die Ionenpositionen in  $[100]$ - und  $[001]$ -Richtung für die Relaxation modifiziert wurden. Die Intensitätsverläufe der Simulationen auf Basis der A-Terminierung erscheint fast als eine Spiegelung des experimentellen Verlaufes für verschiedene senkrecht-de-Broglie Wellenlängen.



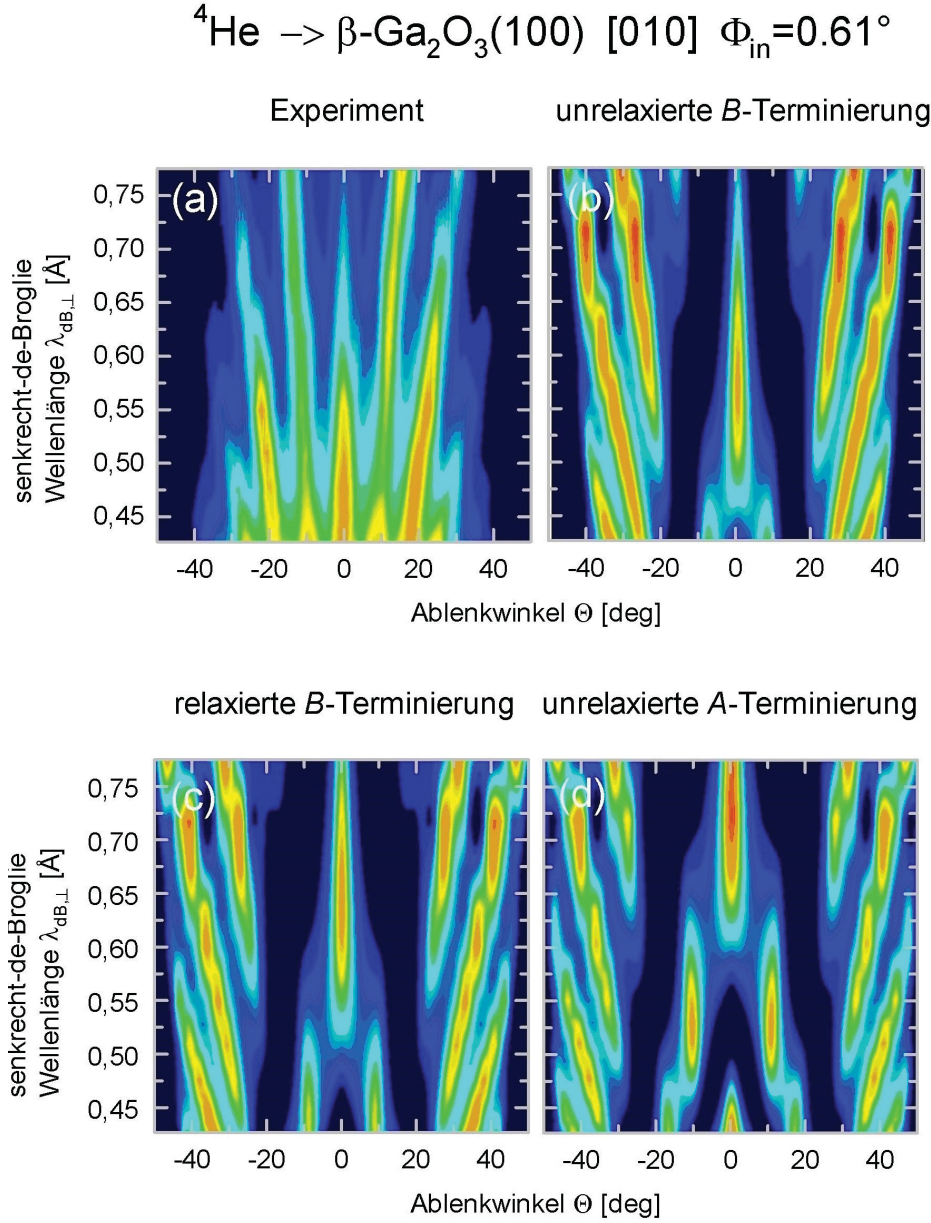


Abbildung 4.16: Vergleich der (a) experimentellen Beugungskarte mit Simulationen der Beugungskarten für (b) die unrelaxierte  $B$ -Terminierung, (c) die relaxierte  $B$ -Terminierung sowie für die (d) unrelaxierte  $A$ -Terminierung für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[010]$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.61^\circ$ .

Somit ist die unrelaxierte  $B$ - bzw. die  $B^*$ -Terminierung erneut ein guter Startpunkt für die Anpassung des Strukturmodells an die Messungen. In diesem Fall wurden nur die Positionen entlang der  $[010]$ -Richtung angepasst, um die Ergebnisse für die Messungen in  $[001]$ -Richtung nicht zu verändern. Die gefundenen Verschiebungen sind im Bereich von  $|\delta_{[010]}| \leq 0.15 \text{ \AA}$ . Ein Vergleich der experimentellen und simulierten Beugungskarte ist in Abbildung 4.17 gezeigt.

Die Intensitätsmodulation für die erste Beugungsordnung konnte minimiert werden,

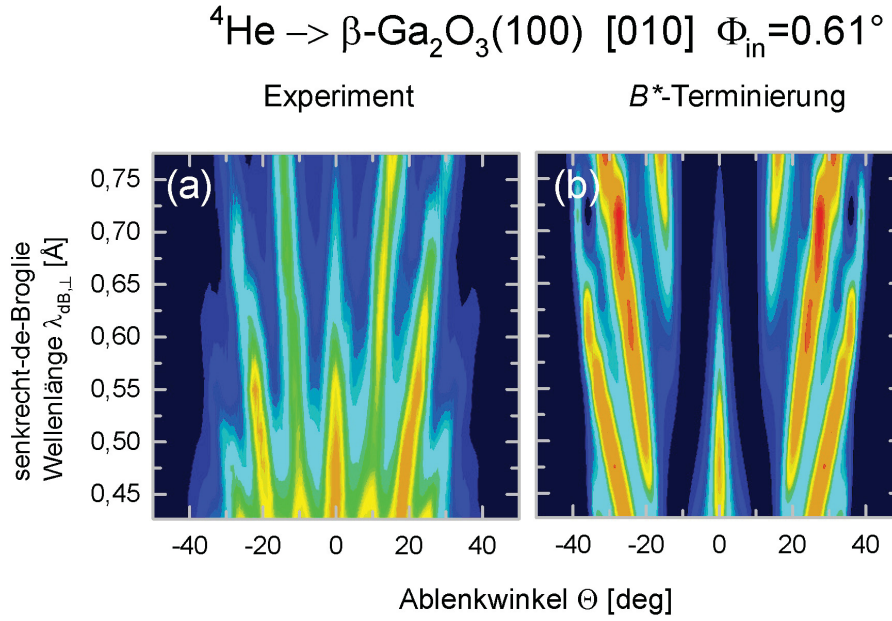


Abbildung 4.17: Vergleich der (a) experimentellen Beugungskarte mit der (b) für die  $B^*$ -Terminierung simulierten Beugungskarte für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[010]$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.61^\circ$ .

sodass die Übereinstimmung zum Experiment weiter verbessert wurde. Simulationen auf Basis der  $B^*$ -Terminierung sind also ebenfalls in  $[010]$ -Richtung in der Lage, das Experiment hervorragend zu beschreiben. Die letzte Abänderung der Ionenpositionen entlang der  $[010]$ -Richtung ist in Abbildung 4.18 dargestellt.

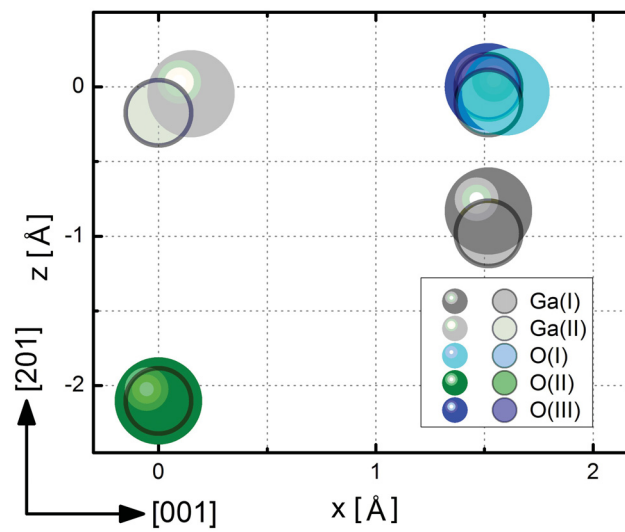


Abbildung 4.18: Darstellung der Ionenpositionen mit Blickrichtung entlang der  $[001]$ -Richtung für die unrelaxierte  $B$ -Terminierung (Kreise mit blasser Farbe) und die  $B^*$ -Terminierung (ausgefüllte Kugeln).

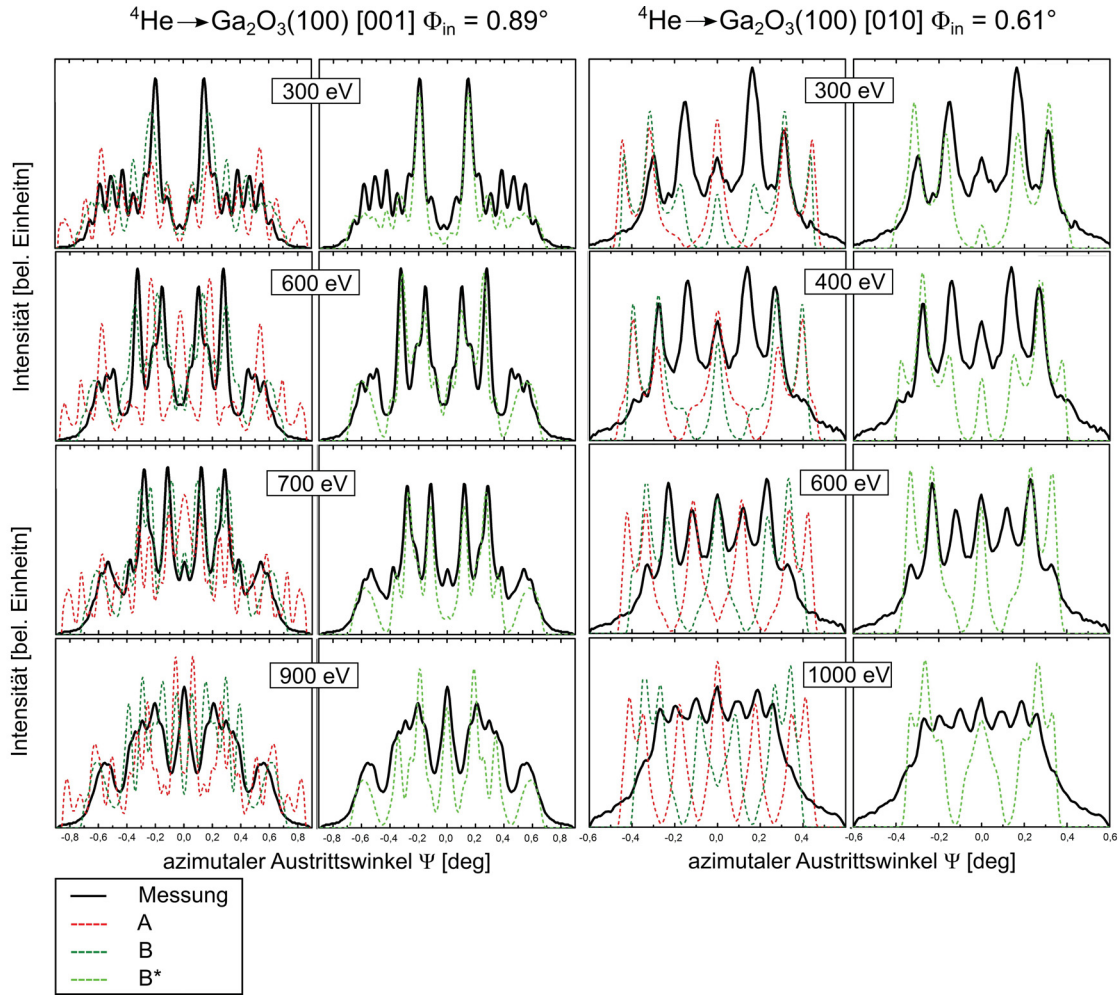


Abbildung 4.19: Beugungsspektren für ausgewählte Energien für die Streuung mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der Richtungen [001] und [010].

Der diskutierte Befund aus den Beugungskarten für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektilen entlang der Richtungen [001] und [010] ist in Abbildung 4.19 noch einmal für ausgewählte Energien gezeigt. Insbesondere zeigt sich auch hier, dass die Simulationen mit der  $B^*$ -Terminierung gut zu den Messungen passen. Einzig die höheren Beugungsordnungen werden in den Simulationen unzureichend beschrieben. In [010]-Richtung ist ebenso deutlich die Modulation der ersten Beugungsordnung, welche im Experiment nicht vorkommt, zu sehen. Die Übereinstimmung mit dem Experiment ist sonst gut.

Gezeigt wurden Simulationen und der Vergleich zum Experiment für  ${}^4\text{He}$ -Projektilen. Es wurden ebenfalls Messungen mit  ${}^3\text{He}$ -Projektilen durchgeführt. Die gemessenen Beugungskarten entlang der [001]- und der [010]-Richtung sowie der Vergleich mit Simulationen auf Basis der A-, der B-, der nach [144] relaxierten B- und der in dieser Arbeit vorgestellten  $B^*$ -Terminierung sind in den Abbildungen 4.20 und 4.21 festgehalten.

Insbesondere für  ${}^3\text{He}$ -Projektilen zeigen Simulationen der Beugungskarte entlang der [001]-Richtung auf Basis der A-Terminierung erhebliche Mängel bei der Beschreibung des Experimentes. Die Beugungskarte der nach [144] relaxierten B-Terminierung zeigt im Bereich von  $0.55 \text{ \AA}$  deutliche Abweichungen vom Experiment, da hier die fünfte Beugungsordnung eine im Vergleich zu hohe Intensität zeigt. So-



wohl die  $B$ -, als auch die relaxierte  $B$ -Terminierung zeigen Abweichungen für den Intensitätsverlauf der nullten Beugungsordnung für einen senkrecht-de-Broglie Wellenlängen Bereich von  $\lambda_{dB\perp} \geq 0.55 \text{ \AA}$ . Hier zeigt die  $B^*$ -Terminierung hervorragende Übereinstimmungen zum Experiment. Insgesamt kann aber keine eindeutige Aussage getroffen werden, welche der  $B$ -Terminierungen das Experiment letztlich besser beschreibt.

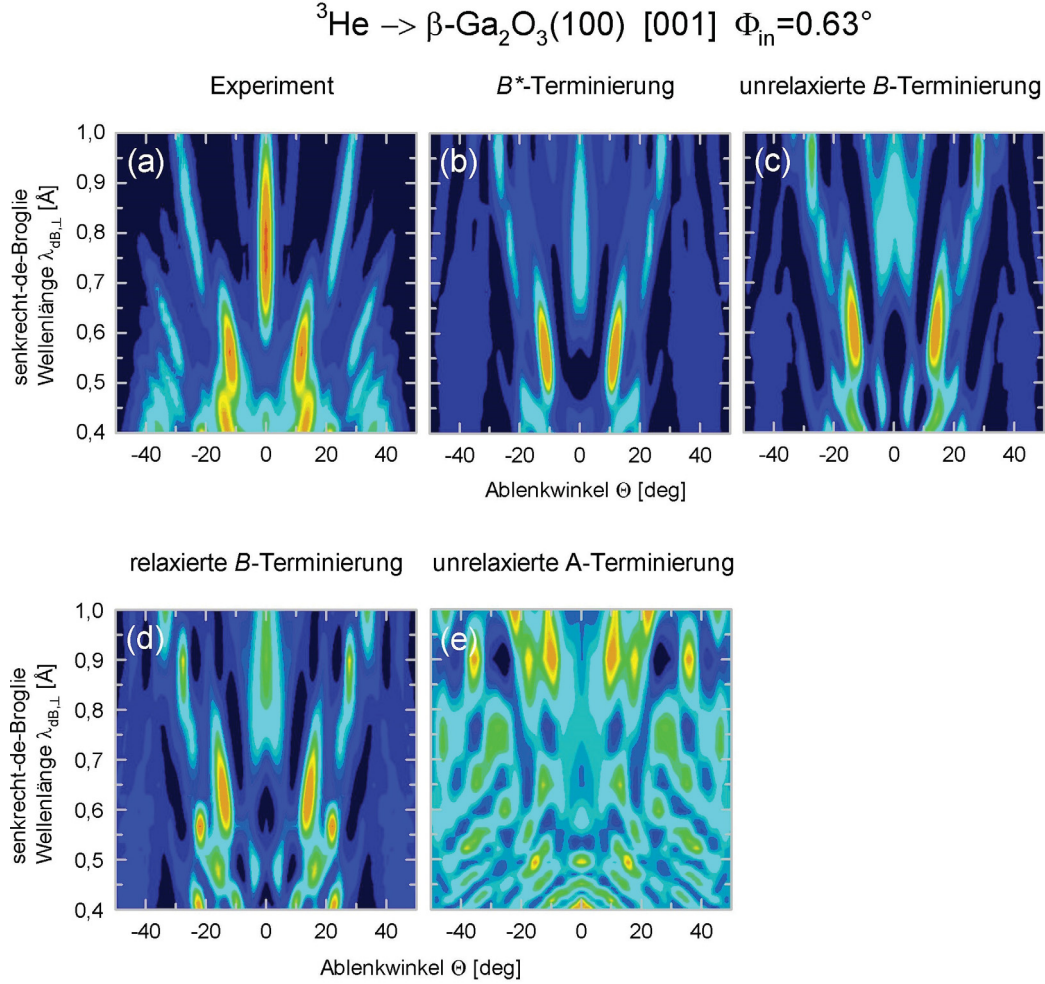


Abbildung 4.20: Vergleichende Darstellung der (a) experimentellen Beugungskarte sowie der simulierten Beugungskarten für die (b)  $B^*$ -, (c) unrelaxierte  $B$ -, (d) relaxierte  $B$ -Terminierung sowie für die (e) unrelaxierte  $A$ -Terminierung für die Streuung von  $^3\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[001]$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.63^\circ$ .

Eine deutlichere Aussage lässt sich für die Messungen entlang der  $[010]$ -Richtung treffen. Wie in Abbildung 4.21 zu sehen, zeigen die Simulationen für sowohl die  $A$ -, wie auch für die relaxierte  $B$ -Terminierung deutliche Unterschiede bei der Beschreibung des Intensitätsverlaufes der ersten Beugungsordnung. Die simulierte Beugungskarte der  $A$ -Terminierung ist darüber hinaus auch hier nicht im Stande, die Intensitätsmodulation der zweiten Beugungsordnung exakt wiederzugeben. Ledig-

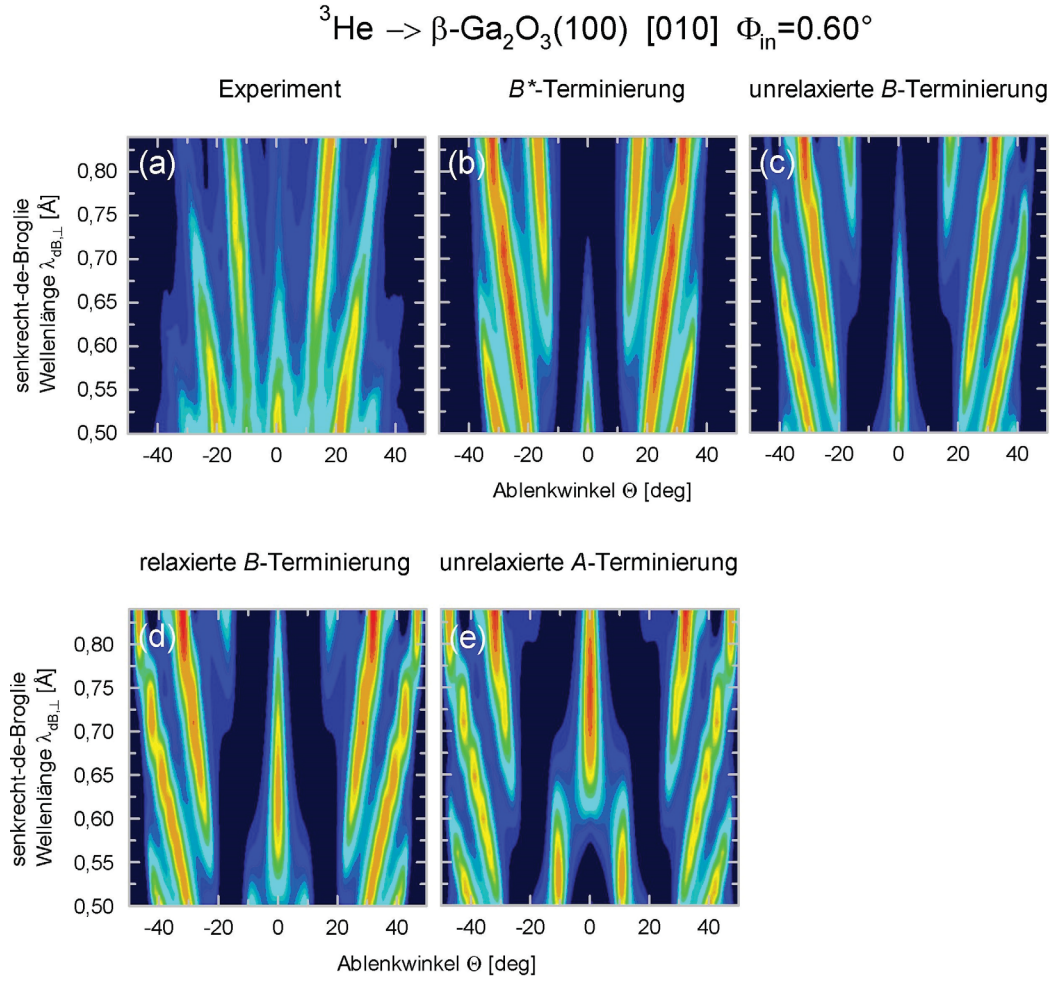


Abbildung 4.21: Vergleichende Darstellung der (a) experimentellen Beugungskarte sowie der simulierten Beugungskarten für die (b)  $B^*$ -, (c) unrelaxierte  $B$ -, (d) relaxierte  $B$ -Terminierung sowie für die (e) unrelaxierte  $A$ -Terminierung für die Streuung von  ${}^3\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[010]$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.60^\circ$ .

lich die Beugungskarten der  $B$ - bzw. der variierten  $B$ -Terminierung geben den Verlauf der Intensitäten der Beugungsordnungen der experimentellen Beugungskarte für den gesamten Bereich der senkrechten de-Broglie Wellenlänge gut wieder. Beide unterscheiden sich dabei nur in der Wellenlänge, ab der die Intensität für die erste Beugungsordnung verschwindet. Diese beträgt für die  $B$ -Terminierung ca.  $0.7 \text{ \AA}$ . Für die  $B^*$ -Terminierung findet man etwa einen Wert von ca.  $0.6 \text{ \AA}$ , was mit dem Experiment übereinstimmt.

Zusammenfassend ergibt sich, dass die experimentellen Beugungskarten sowie die klassischen Regenbögen exzellent von Simulationen auf Basis der in dieser Arbeit vorgestellten  $B^*$ -Terminierung beschrieben werden können. Die einzelnen Verschiebungen der Ionen ist in Tabelle 4.2 gegeben.

Das Ergebnis dieser Arbeit steht im Einklang mit [144], wo die  $B$ -Terminierung als die thermodynamisch stabilere Konfiguration beschrieben wurde. Dies stellt jedoch zunächst einen anderen Befund dar, als bei *Lovejoy et al.* [125], die in ihren Experimenten sowohl die  $A$ -, als auch die  $B$ -Terminierung beobachten konnten. Dass es sich um einen Widerspruch handelt, kann an dieser Stelle noch nicht so formu-

liert werden, denn aufgrund der Mittelung des Potentials entlang der Streurichtung in den hier durchgeführten Experimenten könnte man argumentieren, dass kleine Anteile der *A*-Terminierung durch die Mittelung schlicht nicht erfasst werden.

	$\delta_{[100]}$	$\delta_{[010]}$	$\delta_{[001]}$
$Ga_I^{3+}$	$-0.15 \text{ \AA}$	$0 \text{ \AA}$	$-0.06 \text{ \AA}$
$Ga_{II}^{3+}$	$-0.13 \text{ \AA}$	$0.15 \text{ \AA}$	$-0.1 \text{ \AA}$
$O_I^{2-}$	$0.07 \text{ \AA}$	$0.08 \text{ \AA}$	$0.02 \text{ \AA}$
$O_{II}^{2-}$	$0 \text{ \AA}$	$0 \text{ \AA}$	$0 \text{ \AA}$
$O_{III}^{2-}$	$0 \text{ \AA}$	$0 \text{ \AA}$	$0.08 \text{ \AA}$

Tabelle 4.2: Absolute Verschiebungen der Atompositionen als Anpassung des Strukturmodells der *B*-Terminierung an die Messungen.

Um einen tiefer gehenden Vergleich ziehen zu können, soll der Effekt der Beimischung der *A*-Terminierung untersucht werden. Dazu wurde die simulierte Beugungskarte auf Basis der *A*-Terminierung entlang der  $[010]$ -Richtung prozentual (5%, 15% und 30%) zur Beugungskarte der *B*\*-Terminierung entlang der selben Richtung addiert (siehe Abbildung 4.22).

Im Vergleich zum Experiment verschlechtert sich insbesondere die Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment im kritisch betrachteten Bereich von  $\lambda_{dB\perp} \leq 0.4 \text{ \AA}$  bei steigender Beimischung der *A*-Terminierung. Gleichzeitig steigen die Intensitäten der höheren Beugungsordnungen in der Nähe des Regenbogenwinkels an, was in solch deutlicher Form nicht im Experiment zu sehen ist. Sollte es also in den Messungen eine Beimischung der *A*-Terminierung geben, kann diese aufgrund der hier durchgeführten Simulationen zu kleiner als 10% abgeschätzt werden. Diese Abschätzung kann natürlich nur als sehr grobes Vorgehen gesehen werden. Für eine exakte Abschätzung hätte man eine statistische Verteilung von *A*- und *B*\*-Terminierung in bestimmten Verhältnissen erzeugen müssen. Um diese Oberfläche in Simulationen korrekt zu beschreiben, müsste man vergrößerte Einheitszellen einführen, die für hinreichend kleine Beimischungen der *A*-Terminierung entsprechend groß werden. Eine Simulation mit entsprechend großen Einheitszellen wäre in einem vertretbaren Zeitrahmen nicht durchführbar, weshalb es bei der hier durchgeführten Abschätzung belassen werden soll.

Die Ergebnisse dieser Arbeit stehen nicht im kompletten Kontrast zu den Ergebnissen aus [125]. In beiden Arbeiten wurde das Ergebnis von Rechnungen aus [144] zur thermischen Stabilität der beiden Terminierungen im Wesentlichen bestätigt. Die *B*-Terminierung ist die energetisch stabilere und somit wahrscheinlichere Terminierung der Oberfläche. Die Unterschiede bei dem Anteil der *A*-Terminierung können nicht von der Probenpräparation herrühren, so sie doch in beiden Arbeiten nahezu identisch war. Somit könnten die Ergebnisse Rückschlüsse auf das Kristallwachstum liefern. Möglicherweise kann die unterschiedliche Ausbildung von Stufenkanten, analog zu der Facettenbildung der  $Al_2O_3(0001)$ -Fläche [149–154], auch durch eine Fehlorientierung des Kristalls bei der Spaltung oder beim Wachstum erklärt werden. Durch die Fehlorientierung schließen sich beim Ausheilen des Kristalls Stufenkanten zu Facetten zusammen und liefern so eine andersartige Oberflächenstruktur, als ohne Fehlorientierung. Im Fall der  $Ga_2O_3(100)$ -Fläche könnte das bedeuten, dass die Ausheiltemperatur zwar ausreichend ist, um eine atomar glatte Oberfläche zu

erzeugen, jedoch noch nicht ausreichend ist für eine vollständige Facettierung der Oberfläche, sodass sich die Stufenkanten nur teilweise zusammenschließen. Solche Abhängigkeiten der Facettierung von der Ausheiltemperatur wurden ebenfalls an der  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ -Fläche beobachtet (siehe obige Referenzen). Eine endgültige Schlussfolgerung betreffend dieses Vergleiches kann jedoch nur durch eine hohe Zahl weiterer Vergleichsmessungen gezogen werden.

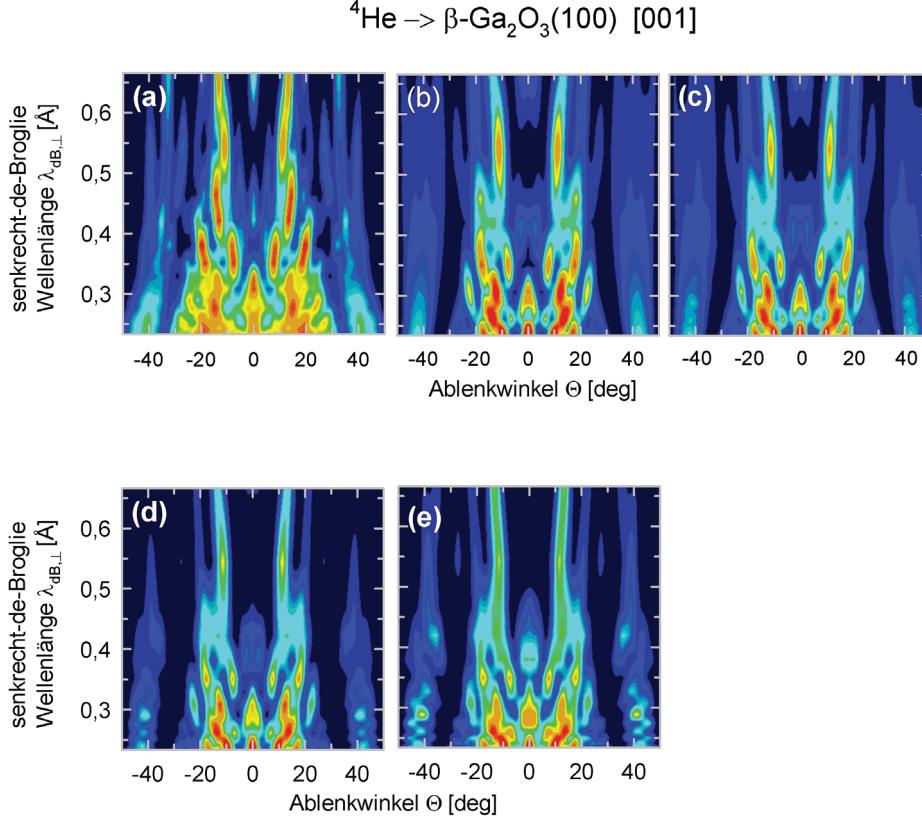


Abbildung 4.22: Vergleich der (a) experimentellen Beugungskarte mit Simulationen der Beugungskarte für (b) eine reine  $B^*$ -Terminierung, (c) eine  $B^*$ -Terminierung mit 5%-Anteil an (unrelaxierter)  $A$ -Terminierung, (d) eine  $B^*$ -Terminierung mit 15%-Anteil an (unrelaxierter)  $A$ -Terminierung und (e) eine  $B^*$ -Terminierung mit 30%-Anteil an (unrelaxierter)  $A$ -Terminierung für die Streuung von  $^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[001]$ -Richtung unter einem Einfallswinkel  $\Phi_{in} = 0.89^\circ$ .

Die Kristallpräparation fand durch das Ausheilen bei bis zu  $T = 1300$  K im UHV, also in einer stark reduzierenden Atmosphäre, statt. Für das Ausheilen in reduzierender Atmosphäre wird in der Literatur die Bildung von Sauerstofffehlstellen angegeben [91, 106, 110–121]. In [116] werden Relaxationen der Ionen aufgrund von Sauerstofffehlstellen berechnet. Diese betreffen die  $\text{Ga}_I^{3+}$ - sowie die  $\text{Ga}_{II}^{3+}$ -Ionen mit Relaxationen um  $0.2 - 0.3$  Å bzw.  $0.07$  Å. Da die in dieser Arbeit gefundenen Relaxationen prinzipiell in der selben Größenordnung sind, wurden Simulationen durchgeführt, bei denen sukzessive Sauerstoff-Ionen aus dem Strukturmodell ent-



fernt wurden (nicht gezeigt). Es konnte festgestellt werden, dass bereits das Fehlen des  $O_{II}$ -Ions der obersten Lage das Beugungsbild nicht verändert. Der Grund ist die Überdeckung des Potentialbeitrages des  $O_{II}$ -Ions durch das  $Ga_I$ -Ion. Somit kann geschlussfolgert werden, dass die Diskrepanz zu den [144] berechneten Relaxationen daher rührt, dass diese für einen perfekten Kristall berechnet wurden. Durch die Sauerstofffehlstellen ist diese Voraussetzung nicht mehr gegeben. Dass im QMS weder ein nennenswerter Anstieg des  $Ga$ -, noch des  $O$ -Partialdrucks erkennbar war, kann daran liegen, dass der generelle Anstieg des Hintergrunddruckes beim Ausheilen des Kristalls die jeweiligen Anstiege überdeckte. Nach höheren Galium-Sauerstoff-Verbindungen [142] wurde nicht gesucht.

In den hier durchgeführten Experimenten ergab sich beim Vergleich zwischen Experiment und Simulation eine klare Präferenz für die  $B$ -Terminierung, wobei es im Rahmen dieser Arbeit möglich war ein alternatives Strukturmodell der  $B$ -Terminierung zu erstellen. Für eine detaillierte Vergleichsdiskussion fehlen die Referenzen, da es außer der Arbeit von *Lovejoy et al.* [125] nach derzeitigem Kenntnisstand keine weiteren gezielten Untersuchungen der Oberflächenterminierung gibt. Zur benannten Referenz wurde ein teilweiser Widerspruch gefunden, da in dieser Arbeit nur die  $B$ -Terminierung mit einem maximalen Anteil  $< 10\%$  der  $A$ -Terminierung die Messungen beschreiben kann.

## 4.2 Die $\beta$ - $Ga_2O_3(001)$ -Fläche

### 4.2.1 Experimentelle Grundlagen

Die  $\beta$ - $Ga_2O_3(001)$ -Fläche wurde bisher kaum experimentell untersucht. Nach dem aktuellen Kenntnisstand, existiert im Wesentlichen nur eine experimentelle Arbeit [101], in der dünne Filme mittels Epitaxie auf einem  $\beta$ - $Ga_2O_3(001)$ -Substrat aufgewachsen wurden. Das Substrat konnte mittels Edge Defined Film Fed Growth hergestellt werden. Nach der bestmöglichen Präparation, waren die Filme zwar glatt, zeigten jedoch Stufenkanten von teilweise 280 nm Höhe. Dies wurde auf eine Fehlorientierung des Substrates zurückgeführt [101]. Solche Fehlorientierungen und somit Terrassenbildungen sind aufgrund der Vorzugsspaltung entlang der (100)-Fläche zu erwarten [148]. Aufgrund der bevorzugten Spaltung entlang der (100)-Fläche (siehe Abschnitt zur  $\beta$ - $Ga_2O_3(100)$ -Fläche) ist mit einer hohen Anzahl an Defektstrukturen auf der Oberfläche zu rechnen. Durch die hohen Anforderungen an die Oberflächenqualität bei FAD-Messungen, war es in der Tat nicht möglich, die Terminierung der Oberfläche zu bestimmen. Lediglich ein Zugriff auf die Symmetriebreiten gelang. Dennoch ist diese Fläche interessant, da hier die Gitterkonstante  $a$ , welche an der  $Ga_2O_3(100)$ -Fläche nicht zu vermessen ist, bestimmbar wird. Somit stellen die Messungen an der (100)- sowie der (001)-Fläche einen vollständigen Satz an Gitterparametern dar.

Wie bei der (100)-Fläche können zwei Terminierungen unterschieden werden, die analog als  $A$ - und  $B$ -Terminierung bezeichnet werden und in [144] diskutiert sind. So ergibt sich die  $A$ -Terminierung aus Reihen einfach ungesättigter  $O_I^{2-}$ -Ionen entlang der [010]-Richtung, welche jeweils an zwei  $Ga_{II}^{3+}$ -Ionen gebunden sind. Zwischen diesen Reihen befinden sich Reihen aus einfach ungesättigten  $Ga_I^{3+}$ -Ionen. Die  $Ga_{II}^{3+}$ - und  $O_I^{2-}$ -Ionen besitzen nur gesättigte Bindungen, während  $O_{II}^{2-}$ -Ionen in der ober-

sten Lage nicht vorkommen. Die  $B$ -Terminierung stellt sich dar als Reihen von doppelt ungesättigten  $O_{II}^{2-}$ -Ionen, die jeweils an ein  $Ga_I^{3+}$ - sowie an ein  $Ga_{II}^{3+}$ -Ion gebunden sind. Zwischen diesen Reihen befinden sich wiederum Reihen doppelt ungesättigter  $Ga_{II}^{3+}$ -Ionen. Die Bindungen der  $Ga_I^{3+}$ - und  $O_{II}^{2-}$ -Ionen in der Oberfläche sind völlig gesättigt, und  $O_I^{2-}$ -Ionen treten in der obersten Lage nicht auf. Auch bei der (001)-Fläche ist die  $B$ -Terminierung thermodynamisch aufgrund der niedrigeren Oberflächenenergie zu favorisieren. Deshalb werden in [144] aufgrund des hohen Aufwandes an Rechenzeit nur Relaxationen für die  $B$ -Terminierung mittels eines Hartree-Fock Ansatzes berechnet und ergeben sich zu  $\delta(z), \delta(x, y) < 0.3 \text{ \AA}$ , was wiederum für eine thermodynamisch stabile Oberfläche spricht. Die  $B$ -Terminierung ist in Abbildung 4.23 dargestellt.

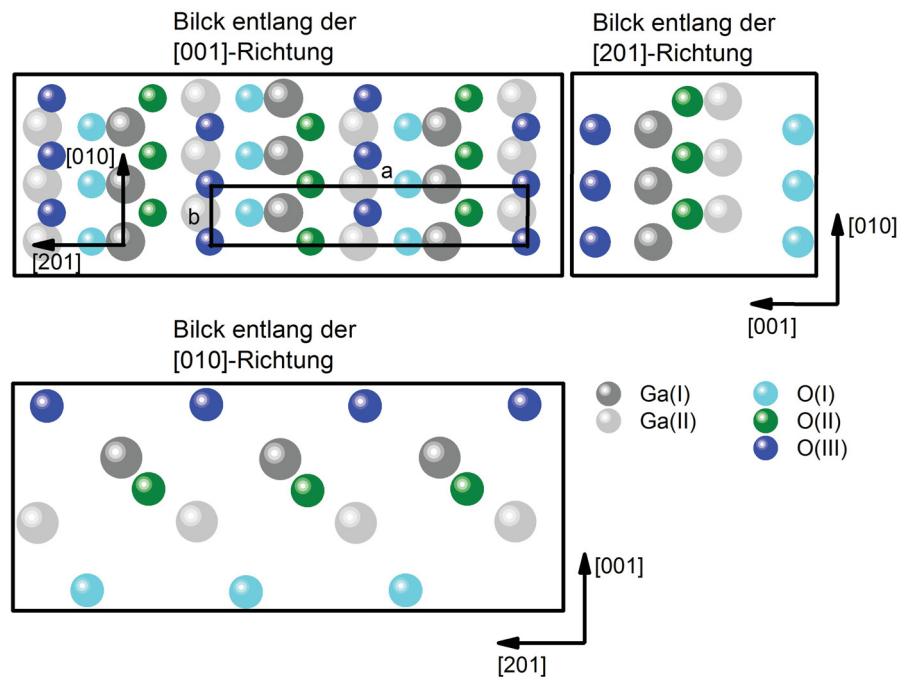


Abbildung 4.23: Darstellung der Struktur des  $\beta$ - $Ga_2O_3(001)$ -Kristalls in Draufsicht sowie Seitenansichten für die  $B$ -Terminierung.

### 4.2.2 Probenpräparation

Durch die guten Ergebnisse für die (100)-Fläche, wurde bei die Präparationsmethode für die (001)-Fläche beibehalten. So wurde der Kristall *in situ* gespalten und in das UHV überführt. Durch die bevorzugte Spaltung in  $[100]$ -Richtung, spalteten die Kristalle so, dass sie eine keilartige Form erhielten (siehe Abbildung 4.24). Diese Kippung der Oberfläche wurde durch das Anbringen eines Keils aus Tantal auf dem Targethalter ausgeglichen.

Die Kratzer und Unebenheiten des Kristalls in Abbildung 4.25 sind nur auf der Unterseite des Kristalls zu finden. Die Oberfläche war optisch glatt und defektfrei. Im UHV wurde der Kristall dann bei Temperaturen von bis zu  $T = 1300 \text{ K}$  für ma-



ximal  $t = 60$  min ausgeheilt. Der Fortschritt der Oberflächenqualität wurde dann durch das Aufnehmen von Streuverteilungen überprüft.

Man erkennt anhand von Abbildung 4.26, dass die Beugungsreflexe in den verschiedenen Richtungen nur schmale azimuthale Breiten zeigen, was für eine hohe Ordnung der Oberfläche spricht. Gleichzeitig erkennt man jedoch auch eine polare Ausdehnung von ca.  $\pm 1^\circ$ . Wie diskutiert, ist durch die Spaltung die Bildung von Stufenkanten sehr wahrscheinlich. Diese führen zu einer Aufstreuung der Projektile.

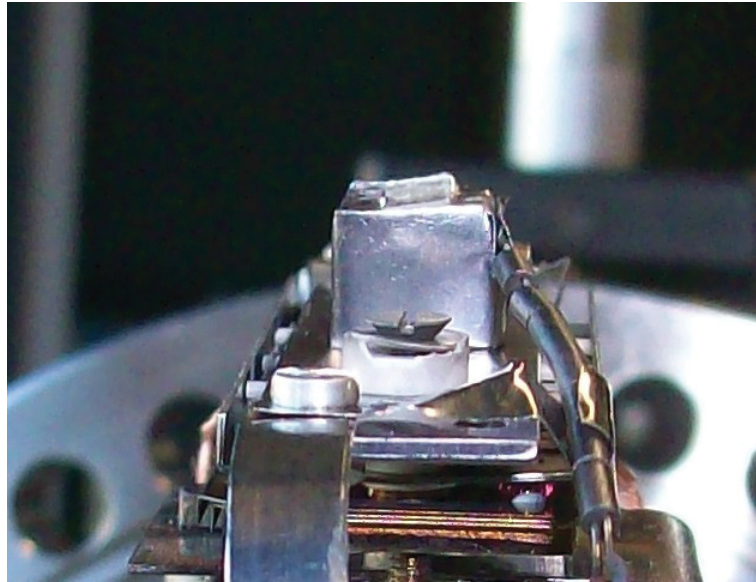


Abbildung 4.24: Bei der Spaltung erhielten die  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Kristalle eine keilarartige Form. Diese wurde durch ein Tantal-Keil ausgeglichen.



Abbildung 4.25: Der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Kristall auf dem Targethalter, vor dem Einbau in das UHV. Die Kratzer und Defekte sind nur auf der Unterseite des Kristalls zu finden.

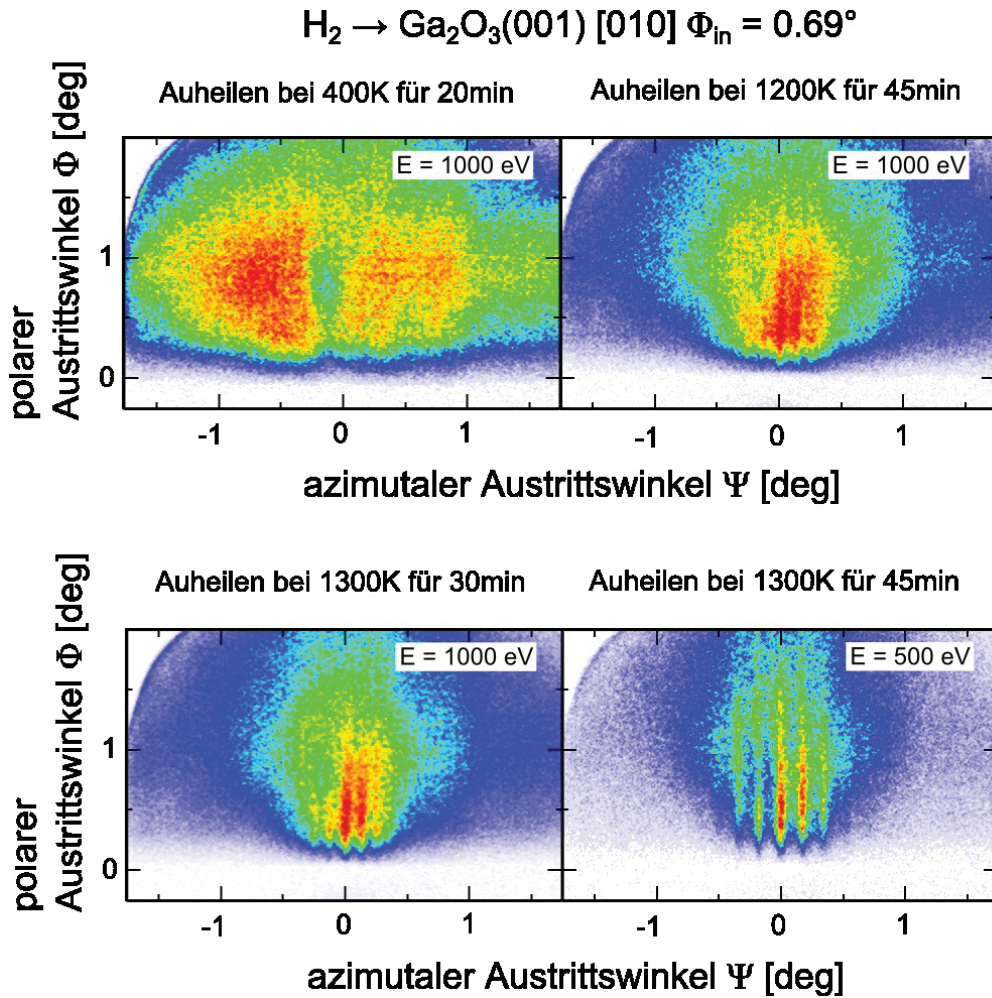


Abbildung 4.26: Streuverteilungen von  $H_2$ -Molekülen mit einer Energie von  $E = 1000$  bzw.  $500$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.69^\circ$  zur Überprüfung des Fortschrittes der Präparation der  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(001)-Fläche. Zu sehen ist die Evolution von einer nahezu kompletten Ausleuchtung des MCPs, was für eine sehr raue Oberfläche spricht, bis hin zu einer guten Oberflächenordnung für das Ausheilen bei  $T = 1300$  K für 30 min bzw. 45 min (jeweils im UHV).

### 4.2.3 Ergebnisse und Diskussion

Es konnten auswertbare Streuverteilungen entlang der [100]-, [210]- und der [010]-Richtung aufgenommen werden. Für die Auswertung der Abstände der Beugungslinien, sind in Abbildung 4.27 Beispielmessungen für die jeweiligen Richtungen mit den entsprechenden Projektionen auf den azimutalen Ablenkwinkel gezeigt.

Für eine bessere Übersichtlichkeit, ist für die Streuung entlang der [100]-Richtung in Abbildung 4.28 eine Vergrößerung der Projektion gezeigt, sodass die sehr dicht liegenden Beugungslinien besser zu erkennen sind.

In Abbildung 4.29 ist graphisch die Auswertung der einzelnen Beugungsspektren mit Angabe der jeweils errechneten Symmetriebreiten gezeigt. Trotz der schlechteren Qualität der Beugungsbilder verglichen mit der (100)-Fläche, konnten sehr genaue Werte ermittelt werden. Ein Vergleich der Symmetriebreiten ist in Tabelle 4.3 vorgenommen.

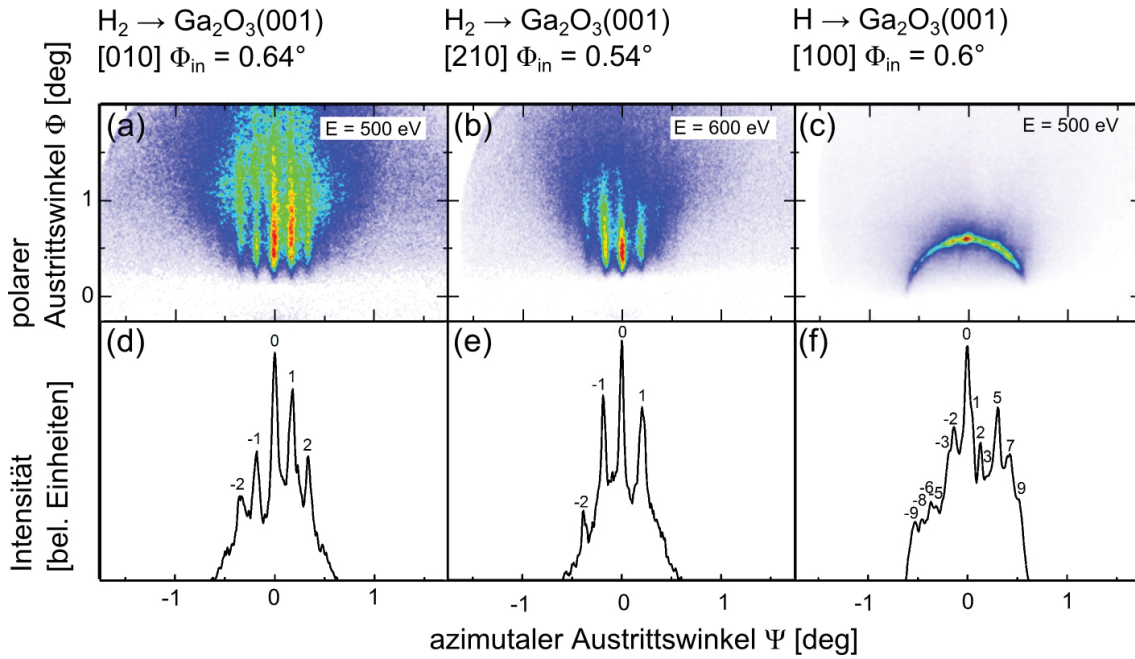


Abbildung 4.27: Beispiele für Beugungsbilder aufgenommen entlang der Richtungen (a) [010], (b) [210] und (c) [100], mit den entsprechenden Projektionen auf die azimutale Ablenkung (d)-(f). Die Streuung fand mit  $H_2$ - bzw.  $H$ -Projektilen unter Einfallswinkeln von  $\Phi_{in} = 0.64^\circ, 0.54^\circ, 0.6^\circ$  mit Energien von 500 bis 600 eV statt.

	Experiment	Literatur
[100]	$(12.2 \pm 0.5) \text{ \AA}$	12.20 $\text{\AA}$
[010]	$(3.0 \pm 0.2) \text{ \AA}$	3.04 $\text{\AA}$
[210]	$(2.65 \pm 0.04) \text{ \AA}$	2.72 $\text{\AA}$

Tabelle 4.3: Zusammenfassung der aus den Messungen an der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche ermittelten Symmetriebreiten für die drei Richtungen [100], [010] und [210].

Die Literaturangaben sind, wie vorher, aus den Gitterparametern  $a$  und  $b$  berechnete Größen, wobei diese aufgrund der rechteckigen Einheitszelle nach

$$d_{uv0} = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{u}{a}\right)^2 + \left(\frac{v}{b}\right)^2}}$$

berechnet wurden. Insbesondere die Bestimmung der Symmetriebreite der [100]-Richtung war eine Motivation für die Messungen an der (001)-Fläche. Man findet eine gute Übereinstimmung mit den Literaturangaben. Auch die anderen beiden gemessenen Symmetriebreiten sind in guter Übereinstimmung.

Bei den Messungen ist ebenfalls anzumerken, dass man sowohl an der (100)-, wie auch an der (001)-Fläche mit hoher Genauigkeit die Parameter des Volumenkristalls erhält. Von diesem Ergebnis ist nicht von vornherein auszugehen. So ist ebenfalls für beide Flächen gezeigt, dass es bis zur Zersetzung des Kristalls aufgrund der hohen

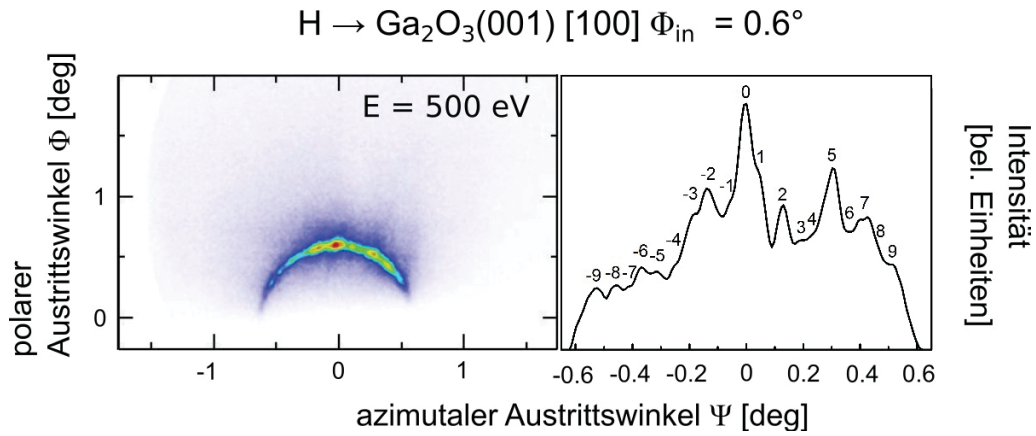


Abbildung 4.28: Vergrößerung der Projektion auf den azimuthalen Austrittswinkel  $\Psi$  für die Streuung entlang der  $[100]$ -Richtung für  $\text{H}$ -Projekte mit einer Energie von  $E_0 = 500$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.6^\circ$ .

Ausheiltemperaturen in hoch-reduzierender Atmosphäre zu keinerlei Rekonstruktionen der Oberfläche kommt. Es kommt lediglich zu Relaxationen der Positionen der Oberflächenatome aufgrund von Sauerstofffehlstellen.

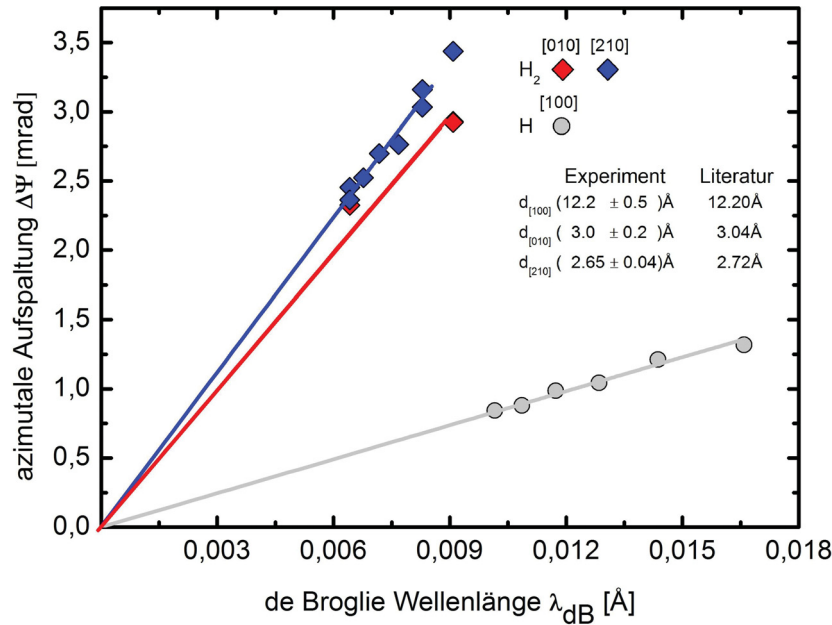


Abbildung 4.29: Zusammenstellung der azimuthalen Aufspaltung der Beugungslinien der drei verschiedenen vermessenen Richtungen  $[100]$ ,  $[210]$  und  $[010]$  der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche für verschiedene Projektile in Abhängigkeit zur senkrecht-de-Broglie Wellenlänge. Im Einsatz der Grafik sind die so ermittelten Symmetriebreiten zusammengefasst.



### 4.3 Zusammenfassung

In FAD-Messungen sowie der Regenbogenstreuung wurde die Oberflächenterminierung der  $\beta$ - $Ga_2O_3(100)$ -Fläche untersucht. Die bestimmten Gitterparameter stehen im Einklang mit den Literaturwerten und entsprechen den Parametern des Volumenkristalls. Eine Rekonstruktion der Oberfläche kann bis zu Ausheiltemperaturen von  $T > 1000^\circ\text{C}$  ausgeschlossen werden. Für die beiden in der Literatur diskutierten Terminierungen  $A$  und  $B$  [144] konnte eine klare Präferenz der  $B$ -Terminierung in den hier durchgeführten Experimenten gezeigt werden. Für eine verbesserte Übereinstimmung zwischen Trajektorienimulationen und den Messungen, wurde ein alternatives Strukturmodell  $B^*$  erstellt, sodass das Experiment in den Simulationen hervorragend widergegeben werden konnte. Die Ergebnisse wurden mit den Ergebnissen der Arbeit von *Lovejoy et al.* [125] verglichen, in der beide Terminierungen auf der Oberfläche zu finden waren. Die Koexistenz beider Terminierungen konnte in den hier durchgeführten Experimenten über entsprechende Simulationen der Beugungskarten für die Streuung mit  $^4\text{He}$ -Projektilen bis auf einen Anteil der  $A$ -Terminierung von  $< 10\%$  ausgeschlossen werden.

Weiterhin wurden nach derzeitigem Kenntnisstand erste gezielte experimentelle Untersuchungen der Oberflächenstruktur eines  $\beta$ - $Ga_2O_3(001)$ -Kristalls durchgeführt. Aufgrund der bevorzugten Spaltung entlang der  $(100)$ -Fläche und eine somit mit Stufen durchsetzte Oberfläche, konnten nur wenige auswertbare Messungen durchgeführt werden. Dennoch wurde der Gitterparameter  $a$ , welcher an der  $(100)$ -Fläche nicht zu messen ist, bestimmt. Der ermittelte Wert zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem Literaturwert. Auch an der  $(001)$ -Fläche konnte eine Rekonstruktion der Oberfläche bis zu Ausheiltemperaturen von  $T > 1000^\circ\text{C}$  ausgeschlossen werden.

## 5 Aluminiumoxid

In den vorher diskutierten Messungen an den Galiumoxidflächen (100) und (001) konnten die Messergebnisse sehr gut in der zweidimensionalen Näherung des Streuprozesses, die im Kapitel „Theoretische Grundlagen“ besprochen wurde, gedeutet werden. 2012 wurden in der Arbeitsgruppe Messungen von *M. Busch* [41, 155] an einem Saphir-(1120)-Kristall ( $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ ) durchgeführt, deren Deutung zunächst im Rahmen dieses Modells nicht möglich war (siehe Abbildung 5.1).

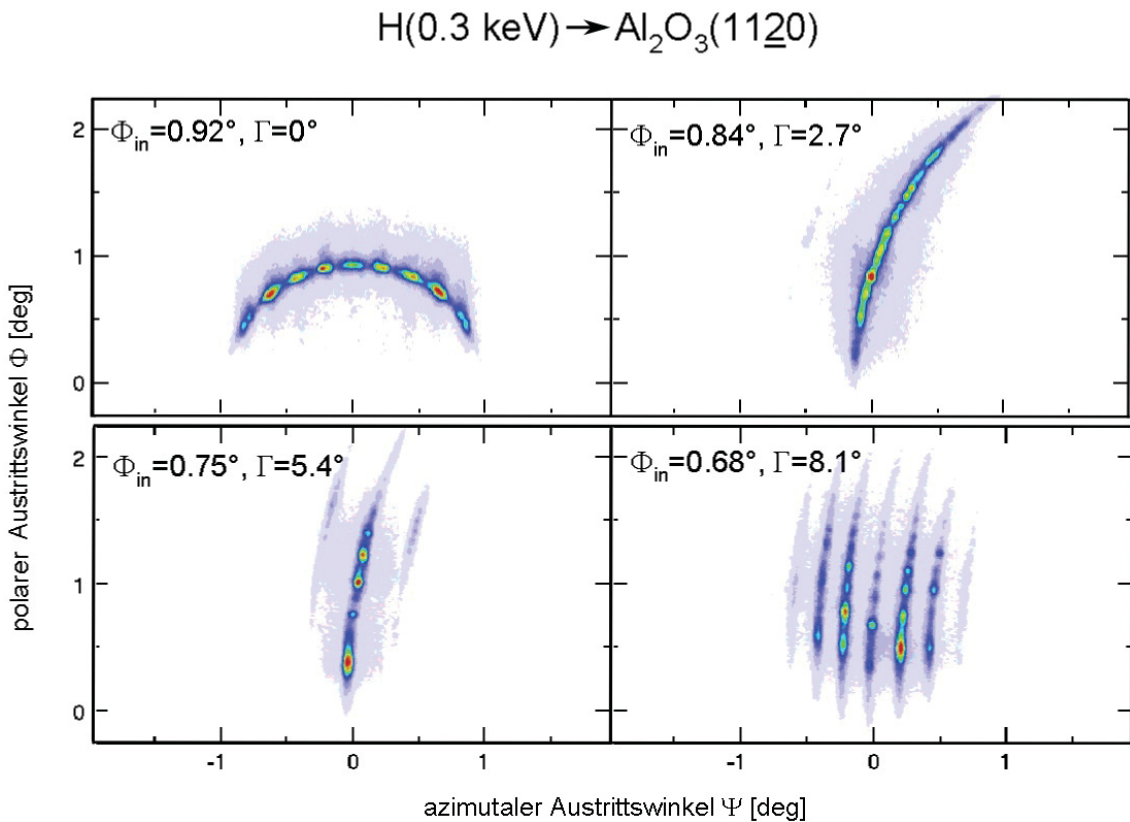


Abbildung 5.1: Messungen mit  $H$ -Projektilen entlang der  $[\bar{1}100]$ -Richtung mit einer Energie von  $E = 300 \text{ eV}$  unter den Einfallswinkeln  $\Phi_{in} = 0.92^\circ$ ,  $0.84^\circ$ ,  $0.75^\circ$  und  $0.68^\circ$  für die verschiedenen Verdrehungen  $\Gamma = 0^\circ$ ,  $2.7^\circ$ ,  $5.4^\circ$  und  $8.1^\circ$  aus der Kristallrichtung. (Messungen und ursprüngliche Abbildung aus [41, 155], Abbildung abgewandelt)

In Abbildung 5.1 sind Messungen mit  $H$ -Projektilen entlang der  $[\bar{1}100]$ -Richtung der Saphir-(1120)-Fläche mit einer Energie von  $E = 300 \text{ eV}$  unter den Einfallswinkeln  $\Phi_{in} = 0.92^\circ$ ,  $0.84^\circ$ ,  $0.75^\circ$  und  $0.68^\circ$  für die verschiedenen azimutalen Verdrehungen  $\Gamma = 0^\circ$ ,  $2.7^\circ$ ,  $5.4^\circ$  und  $8.1^\circ$  aus der Kristallrichtung gezeigt. Für eine Verdrehung von



bis zu  $\Gamma = 2.7^\circ$  verhält sich der Laue-Kreis nullter Ordnung wie erwartet. Auffällig ist die geringe Ausdehnung der Beugungsreflexe. Insbesondere die kleine polare Breite der Reflexe spricht für eine Interferenzbedingung entlang der Streurichtung. Ab einer Verdrehung von etwa  $\Gamma = 5^\circ$  erkennt man weitere Kreisbögen mit jeweils modulierter Intensitätsverteilung. Für höhere Verdrehungen sind in den Messungen weitere Kreisbögen zu erkennen. Ihr gegenseitiger Abstand verringert sich mit steigender Verdrehung  $\Gamma$ . Eine Erklärung für dieses Phänomen konnte in [41] durch die Anwendung der Theorie zur dreidimensionalen Streuung aus [79] gegeben werden. Die erst bei Verdrehung des Kristalls in den Streuverteilungen auftretenden Kreisbögen sind Laue-Kreise höherer Ordnung, deren Abstand durch die Verdrehung kleiner wird, sodass sie ebenfalls ausgeleuchtet werden können. Die Intensitätsmodulationen auf den jeweiligen Laue-Kreisen sind die entsprechenden Bragg-Reflexe. Die Ausleuchtung von höheren Laue-Kreis-Ordnungen konnte also für die streifende Streuung von Atomen erstmalig nachgewiesen werden. Die notwendige Erweiterung der Theorie der FAD wird im Folgenden gegeben.

Ziel dieser Arbeit war es zunächst, die bisherigen Messungen an der Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Fläche zu bestätigen und auf weitere Projektile zu erweitern.

## 5.1 Erweiterung der Streutheorie auf 3D

Zunächst soll eine erweiterte Streugeometrie eingeführt werden (siehe Abbildung 5.2). Die Beschreibung der Streugeometrie wurde von *T. Engel* und *K. H. Rieder* [79] vorgenommen. Ein Projektil streue unter dem Einfallswinkel  $\Phi_{in}$  an der Oberfläche und habe dabei den initialen Wellenvektor  $\vec{k}_i = (\vec{K}_i, k_{iz})$  mit

$$|\vec{k}_i| = \frac{2\pi}{\lambda_{dB}} \quad (5.1)$$

Ist die Streuung elastisch, so muss die Laue-Beziehung

$$\vec{k}_i - \vec{k}_{\vec{G}} = \vec{q}_{\vec{G}} = (\vec{G}, q_{\vec{G}z}) \quad (5.2)$$

erfüllt werden. Dabei ist  $\vec{k}_{\vec{G}}$  der Wellenvektor nach dem Streuprozess und  $\vec{q}_{\vec{G}}$  ein reziproker Gittervektor. Man betrachtet nun eine zwei-dimensionale Korrugation  $\varsigma(x, y)$ . Die Einheitszelle der Oberfläche werde aufgespannt durch die Gittervektoren  $\vec{a}_1$  und  $\vec{a}_2$ , die den Winkel  $\beta$  einschließen. Der Kristall sei um den Winkel  $\Gamma$  aus einer niedrig-indizierten Kristallrichtung verdreht. So ergeben sich verallgemeinerte Beziehungen für den azimuthalen und den polaren Streuwinkel  $\Psi$  bzw.  $\Phi$  [79]

$$\sin(\Psi_{hk}) = \left[ -\frac{h}{a_1} (\sin(\Gamma) + \cos(\Gamma) \cot(\beta)) + \frac{k \cos(\Gamma)}{a_2 \sin(\beta)} \right] \lambda_{dB} \quad (5.3)$$

$$\cos(\Phi_{hk}) = \left[ \cos(\Phi_{in}) + \lambda_{dB} \cdot \left( \frac{h}{a_1} (\cos(\Gamma) - \sin(\Gamma) \cot(\beta)) + \frac{k \sin(\Gamma)}{a_2 \sin(\beta)} \right) \right] \cdot \frac{1}{\cos(\Psi_{hk})} \quad (5.4)$$

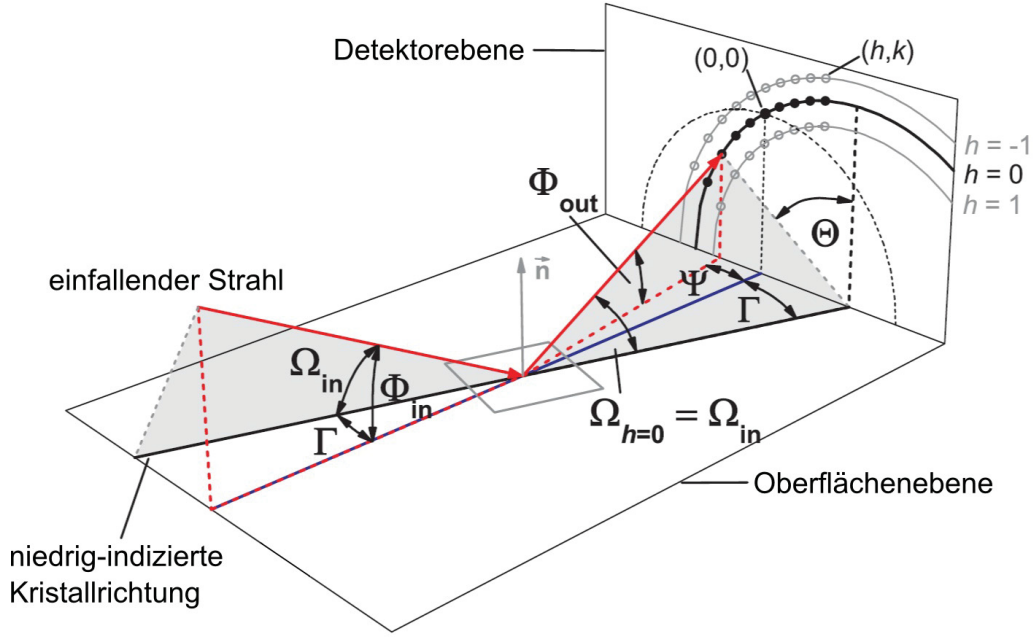


Abbildung 5.2: Darstellung der Streugeometrie analog zu Abbildung 2.3 für die streifende Streuung schneller Atome, wenn man eine Verdrehung  $\Gamma$  zulässt, an einer Oberfläche (Streuung in der Oberflächenebene). Die entstehenden Winkelverteilungen der gestreuten Projektile werden dann in der Detektorebene aufgenommen. (Abbildung entnommen aus [41] und modifiziert)

wobei  $h$  der Index des Laue-Kreises und  $k$  der Index des Bragg-Reflexes auf dem jeweiligen Laue-Kreis ist. Für den nullten Laue-Kreis bei  $\Gamma = 0$  ergibt sich aus den Gleichungen die Bragg-Beziehung (2.28), wobei die Kanalbreite dann mit  $d = a_2 \cdot \sin(\beta)$  zu identifizieren ist.

Der Radius  $\Omega_h$  des  $h$ -ten Laue-Kreises lässt sich über (5.3) und (5.4) bestimmen. Da es für den Radius irrelevant ist, welche Bragg-Ordnung betrachtet wird, kann man für die Berechnung ohne Beschränkung der Allgemeinheit den 0-ten Bragg-Reflex ( $k = 0$ ) betrachten. Nehmen wir noch an, dass der Winkel  $\Phi_{h0}$  klein sein soll, was für die Laue-Kreise im ausgeleuchteten Bereich von etwa  $\Delta\Phi = -1 - 4^\circ$  sicherlich eine zulässige Näherung ist. So gilt  $\cos(\Phi_{h0}) \approx 1$  und es vereinfachen sich die Gleichungen (5.3) und (5.4) zu

$$\sin(\Psi_{h0}) = -\lambda_{dB} \frac{h}{a_1} (\sin(\Gamma) + \cos(\Gamma) \cot(\beta)) \quad (5.5)$$

$$\cos(\Psi_{h0}) = \cos(\Phi_{in}) + \lambda_{dB} \cdot \left( \frac{h}{a_1} (\cos(\Gamma) - \sin(\Gamma) \cot(\beta)) \right) \quad (5.6)$$

Die Lösung des Gleichungssystems ergibt unter Ausnutzung von  $\Psi_{h0} + \Gamma \approx \Omega_h$

$$\cos(\Omega_h) = \cos(\Phi_{in}) \cos(\Gamma) + \lambda_{dB} \frac{h}{a_1} \quad (5.7)$$

Die Differenz der Radien benachbarter Laue-Kreise lässt sich somit berechnen nach

$$\cos(\Delta\Omega) = \frac{\lambda_{dB}}{d} \quad (5.8)$$

mit  $d$  als allgemeine Symmetriebreite und  $\cos(\Delta\Omega) = \cos(\Omega_{h+1}) - \cos(\Omega_h)$ . Durch die Verdrehung muss der Einfallswinkel angepasst werden, da der Einfall nicht mehr senkrecht zur Kristallrichtung verläuft, die Projektile also „schräg“ auf die Kristallrichtung treffen. Aus geometrischen Überlegungen folgt näherungsweise

$$\tan(\Omega) = \frac{\sqrt{(\tan(\Gamma) + \tan(\Psi))^2 + (1 + \tan^2(\Psi)) \tan^2(\Phi)}}{1} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \tan^2(\Gamma)}}$$

wobei man diese Gleichung für die üblichen Größen von  $|\Gamma| \leq 10^\circ$  und  $|\Psi| \leq 1.5^\circ$  vereinfachen kann zu

$$\tan(\Omega) = \sqrt{\tan^2(\Gamma + \Psi) + \tan^2(\Phi)} \quad (5.9)$$

Der effektive Einfallswinkel ergibt sich dann durch Einsetzen von  $\Psi = 0$  und  $\Phi = \Phi_{in}$  zu

$$\tan(\Omega_{in}) = \sqrt{\tan^2(\Gamma) + \tan^2(\Phi_{in})} \quad (5.10)$$

Für Flächen, deren Einheitszelle eine so geringe Ausdehnung besitzt, dass durch die Mittelung des Potentials entlang der Streurichtung aufgrund der Streugeometrie die Korrugation entlang der Streurichtung näherungsweise Null ist, gilt  $\Phi_{in} = \Phi_{out}$ . Die Aufstreuung ist also im Idealfall Null. Aufgrund von thermischen Schwingungen, vergrößert sich die Aufstreuung auf wenige Zehntel Grad [74]. In diesem Fall ist es nicht möglich, selbst bei geringen Abständen der Laue-Ordnungen, Laue-Kreise höherer Ordnung zu beobachten, da der ausgeleuchtete Bereich des Spektrums schlicht zu klein ist.

Hat die Oberfläche nun ein langwelliges Höhenprofil bei einer hinreichenden Größe der Einheitszelle, sodass dieses Höhenprofil nicht aufgrund der Mittelung entlang der Streurichtung entfällt, kommt es für verschiedene Stoßparameter  $b_x$  in  $x$ - und  $b_y$  in  $y$ -Richtung zu einer Aufstreuung. Somit vergrößert sich der ausgeleuchtete Bereich des Spektrums. Wird der Abstand der Laue-Kreise durch Verdrehung des Kristalls um den Winkel  $\Gamma$  nun entsprechend gering, können Laue-Kreise höherer Ordnungen im Experiment beobachtet werden. Der Abstand der Laue-Kreise ist etwa ( $H$ -Atome mit der Energie  $E = 500\text{eV}$ , gestreut unter einem Einfallswinkel  $\Phi_{in} = 1.5^\circ$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ ,  $\Gamma = 7^\circ$ )  $\Delta\Phi \approx 0.5^\circ$  für die ersten drei Laue-Kreis Ordnungen. Die Aufstreuung, in Abstimmung mit dem Experiment (siehe Abbildung 5.1), beträgt abgeschätzt also etwa  $1.5 - 2^\circ$ .

Durch den effektiv auf  $\Omega_{in}$  erhöhten Einfallswinkel, vergrößert sich die Korrugation des Wechselwirkungspotentials, was die Aufstreuung der Projektile begünstigt. Dem entgegen wirkt die Verkleinerung der Korrugation aufgrund der Verdrehung  $\Gamma$ . Zweiteres überwiegt, sodass für große Verdrehungen  $\Gamma$  die axiale in eine planare Gitterführung übergeht und nur noch spekulär reflektierte Projektile zu beobachten sind.

Die vorgestellte theoretische Beschreibung konnte in [41] dazu genutzt werden, um

die gemessenen Streuverteilungen zu erklären. Für die Saphir-(1120)-Fläche ist eine (12x4)-Rekonstruktion der Oberfläche bekannt (siehe zum Beispiel [156]). Die durch die Rekonstruktion entstehende Einheitszelle ist rhombisch mit Seitenlängen von ca. 61 Å und 33 Å [157] und ist damit groß genug, dass ein langwelliges Höhenprofil trotz der Mittelung des Wechselwirkungspotentials entlang der Streurichtung bestehen bleibt. Das so entstehende Höhenprofil des gemittelten Wechselwirkungspotentials bewirkt einen endlichen Abstand der Laue-Kreise, sodass es (durch Verdrehung) möglich wird im Experiment Laue-Kreise höherer Ordnung zu beobachten. Die geringe polare Ausdehnung der Beugungsreflexe hat seinen Ursprung in der durch die Geometrie der Einheitszelle erzeugten longitudinalen Kohärenz der gestreuten Projektile.

Eine Zuordnung der Laue-Kreis- sowie der Bragg-Ordnungen ist in Abbildung 5.3 an den Messungen aus benannter Arbeit [41] gezeigt. Man findet eine hervorragende Übereinstimmung zwischen den erwarteten Positionen der Beugungsreflexe und den Positionen aus der Messung.

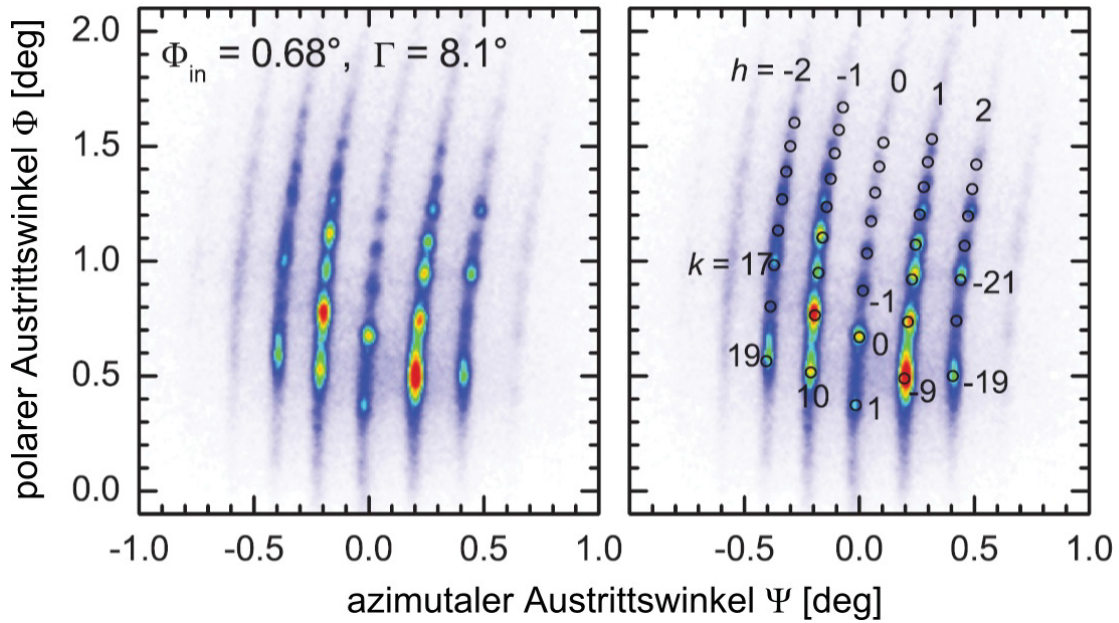


Abbildung 5.3: Gezeigt ist die Zuordnung der Laue-Kreis- und Bragg-Ordnungen  $h$  bzw.  $k$  für die Messung mit  $H$ -Projektilen entlang der  $[1100]$ -Richtung, um  $\Gamma = 8.1^\circ$  verdreht, mit einer Energie von  $E = 300\text{eV}$  unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.68^\circ$ . Man beachte die außerordentlich gute Übereinstimmung zwischen den erwarteten und den realen Positionen der Beugungsreflexe im MCP. (Abbildung aus [41] entnommen und modifiziert)

Für die Berechnung der Intensitäten der Beugungsreflexe kann das Modell von *Garibaldi et al.* [56] verwendet werden, wobei dieses aufgrund der veränderten Streugeometrie zu modifizieren ist. Man geht von einem Potential in Harter-Wand Näherung aus, wie bei den Überlegungen in zwei Dimensionen (siehe (2.2)), mit der Korugation  $\varsigma(x, y)$ . Man betrachte ein Projektil mit dem einlaufenden Wellenvektor  $\vec{k}_i = (\vec{K}_i, k_{iz})$  und dem Wellenvektor  $\vec{k}_{\vec{G}} = (\vec{K}_{\vec{G}}, k_{\vec{G}z})$  nach der Streuung, wobei hier

wieder die übliche Aufspaltung in eine senkrechte  $k_z$  und eine in der Oberflächenebene liegende Komponente  $\vec{K}$  durchgeführt wurde. Die Streuung soll elastisch sein, wodurch  $|\vec{k}_i| = |\vec{k}_G| = k$  mit

$$k = \frac{2\pi}{\lambda_{dB}} \quad (5.11)$$

Für die Streuung muss die Laue-Bedingung (5.2) erfüllt sein. Beschreibt man das Projektil beim Einfall auf die Oberfläche als ebene Welle, lässt sich die Wellenfunktion  $\Psi$  im Fernfeld ( $z \rightarrow \infty$ ) ebenfalls als ebene Welle darstellen [79].

$$\begin{aligned} \Psi(\vec{R}) &= \exp\left(i \cdot (\vec{K} \cdot \vec{R} + k_{iz}z)\right) + \\ &+ \sum_{\vec{G}} A_{\vec{G}} \exp\left(i \cdot (\vec{K} + \vec{G})\right) \exp(i \cdot k_{Gz}z) \end{aligned} \quad (5.12)$$

Dabei sind die Koeffizienten  $A_{\vec{G}}$  die Streuamplituden des jeweiligen Reflexes. Die Intensität berechnet sich dann über  $I \sim |A_{\vec{G}}|^2$ . Die Streuamplituden sind unter anderem abhängig von der Korrugation und der Ladungsverteilung der Oberfläche [79]. Die Rayleigh-Näherung geht davon aus, dass die Beschreibung der Wellenfunktion als ebene Welle überall gilt, insbesondere auch an der Oberfläche. Auf (5.12) kann demnach die Randbedingung für die Harte-Wand  $\Psi(\vec{R}, z = \varsigma(\vec{R})) = 0$  angewendet werden.

$$\exp\left(i \cdot k_{iz}\varsigma(\vec{R})\right) = - \sum_{\vec{G}} A_{\vec{G}} \exp\left(i \cdot k_{Gz}\varsigma(\vec{R})\right) \exp\left(i \cdot \vec{G} \cdot \vec{R}\right) \quad (5.13)$$

Gleichung (5.13) muss an allen Punkten  $\vec{R}$  der Oberfläche erfüllt sein. Multipliziert man beide Seiten in (5.13) mit  $\exp\left(-i \cdot (\vec{G}' \cdot \vec{R} + k_{G'z}\varsigma(\vec{R}))\right)$  und integriert über die Einheitszelle, so erhält man [79]

$$\sum_{\vec{G}} M_{\vec{G}\vec{G}'} A_{\vec{G}} = A_{\vec{G}'}^0 \quad (5.14)$$

mit

$$M_{\vec{G}\vec{G}'} = \frac{1}{F_{EZ}} \int_{EZ} d\vec{R} \cdot \exp\left(i \cdot ((\vec{G} - \vec{G}') \cdot \vec{R} + (k_{Gz} - k_{G'z})\varsigma(\vec{R}))\right) \quad (5.15)$$

und

$$A_{\vec{G}'}^0 = -\frac{1}{F_{EZ}} \int_{EZ} d\vec{R} \cdot \exp\left(-i \cdot (\vec{G}' \cdot \vec{R} + (k_{Gz} - k_{iz})\varsigma(\vec{R}))\right) \quad (5.16)$$

Dabei ist  $F_{EZ}$  die Fläche der Einheitszelle.  $M_{\vec{G}\vec{G}'}$  stellt eine Matrix dar, deren Diagonalelemente gleich Eins sind (siehe Gleichung (5.15)). Die „Eikonalnäherung“ besteht darin, die Nicht-Diagonalelemente als klein und somit vernachlässigbar anzunehmen. Voraussetzung dafür ist, dass die Korrugationsfunktion glatt und ihre Amplitude

klein gegenüber der Gitterkonstante ist. Ferner werden Beiträge evaneszenter Wellen sowie der Mehrfachstreuungen ausgeschlossen [56, 79]. Damit gilt für die Streuamplituden

$$A_{\vec{G}} = A_{\vec{G}}^0 \quad (5.17)$$

wodurch sich die Intensität über  $I \sim |A_{\vec{G}}|^2$  durch das Lösen des Integrals (5.16) angeben lässt. Einzig die Korrugationsfunktion  $\varsigma(\vec{R})$  muss bekannt sein. *Garibaldi et al.* finden zunächst in Eikonalnäherung für kleine  $\vec{G}$  [56]

$$A_{\vec{G}} = \frac{1}{V_{EZ}} \int_{EZ} \exp(i(\vec{G} \cdot \vec{R} + q_{\vec{G}z} \varsigma(\vec{R}))) d\vec{R} \quad (5.18)$$

In [56] wurden als Ansatz für die Korrugation zwei Kosinusfunktionen für jede Richtung, mit der gleichen Amplitude für beide Funktionen, verwendet. Für die streifende Streuung ist dieser Ansatz nicht haltbar. Durch den flachen Einfallswinkel und die dadurch entstehende Mittelung entlang der Streurichtung, ist das Potential entlang der Streurichtung sehr viel flacher und damit die Korrugation gegenüber der Korrugation senkrecht zur Streurichtung verkleinert. Somit muss die Korrugationsfunktion modifiziert werden zu

$$\varsigma(\vec{R}) = \frac{1}{2} \varsigma_{max,x} \cos\left(\frac{2\pi}{a_x} x\right) + \frac{1}{2} \varsigma_{max,y} \cos\left(\frac{2\pi}{a_y} y\right) \quad (5.19)$$

mit den Symmetriebreiten  $a_x$  in  $x$ -, bzw.  $a_y$  in  $y$ -Richtung. Unter der Voraussetzung  $\vec{G} = h \cdot \frac{2\pi}{a_x} \vec{e}_x + k \cdot \frac{2\pi}{a_y} \vec{e}_y$ , findet man durch Einsetzen von (5.19) in (5.18) und durch Lösen des Integrals für die Intensität

$$I \sim J_{|h|}^2(c_x) \cdot J_{|k|}^2(c_y) \quad (5.20)$$

mit

$$c_{x,y} = \frac{1}{2} \varsigma_{max,x,y} q_z \quad (5.21)$$

Für die  $z$ -Komponente des Impulsübertrages gilt

$$q_z = k_{iz} - k_{\vec{G}z} = k(\cos(\bar{\Theta}_i) + \cos(\bar{\Theta}_{\vec{G}})) \quad (5.22)$$

Die Bezeichnung  $\bar{\Theta}$  soll andeuten, dass in [56] zwar der Winkel Theta verwendet wird, dort aber den Winkel zwischen  $\vec{k}$  und der Oberflächennormalen bezeichnet. Um den Winkel  $\Theta$  in der Detektorebene zu erhalten, muss der Winkel  $\bar{\Theta}$  umgerechnet werden und man findet durch geometrische Überlegungen

$$\cos(\bar{\Theta}) = \cos(\Theta) \cdot \sin(\Omega) \quad (5.23)$$



Setzt man diese Beziehung und (5.11) in (5.21) ein, so ergibt sich

$$c_{x,y} = \frac{1}{2} \varsigma_{max,x,y} \frac{2\pi}{\lambda_{dB}} (\cos(\Theta_i) \cdot \sin(\Omega_i) + \cos(\Theta_{\vec{G}}) \cdot \sin(\Omega_{\vec{G}})) \quad (5.24)$$

Wie man sich leicht überzeugen kann, findet man für den zweidimensionalen Fall dadurch, dass  $\Theta_i = 0$  sowie  $\Omega_i = \Omega_{\vec{G}} = \Phi_{in}$  gilt, die Gleichung (2.37). Diese kann so im Nachhinein als Spezialfall der allgemeineren, dreidimensionalen Lösung gerechtfertigt werden.

Der Ansatz für die Korrugation (5.19) gilt nur für eine einatomige Einheitszelle, denn sie beschreibt nur eine Schwingungsperiode der Korrugation innerhalb der Einheitszelle. Das bedeutet, dass sich nur auf den Eckpunkten der Einheitszelle Atome befinden. Allgemein können die Einheitszellen eine wesentlich kompliziertere Gestalt haben, sodass mehr Schwingungsperioden berücksichtigt werden müssen. Es gebe  $N_x$  viele Atome entlang der  $x$ -, bzw.  $N_y$  viele Atome in  $y$ -Richtung. Die Anzahl der vollen Schwingungen sind dann  $m_x = N_x - 1$  und  $m_y = N_y - 1$ , sodass gilt

$$\varsigma(\vec{R}) = \frac{1}{2} \varsigma_{max,x} \cos\left(m_x \frac{2\pi}{a_x} x\right) + \frac{1}{2} \varsigma_{max,y} \cos\left(m_y \frac{2\pi}{a_y} y\right) \quad (5.25)$$

wobei  $m_{x,y}$  eine ganze Zahl ist. Gleichung (5.20) modifiziert sich zu

$$I \sim J_{\frac{|h|}{m_x}}^2(c_x) \cdot J_{\frac{|k|}{m_y}}^2(c_y) \quad (5.26)$$

Es gibt auch Fälle, wie im Falle des Systems  $LiF(001)$  [23, 158] oder  $MgO(001)$  [23, 42], in dem die Potentialform von weniger als den  $N$  Atomen dominiert wird, sodass  $m_{x,y} \neq N_{x,y} - 1$  gilt. Dann ist  $m_{x,y}$  entsprechend anzupassen. Die Verwendung der Quotienten  $\frac{h,k}{m_{x,y}}$  ist möglich, da die Bessel-Funktion prinzipiell auch für nicht-ganzzahlige Indizes definiert ist.

Die maximale Korrugation  $\varsigma_{max,x,y}$  wurde bisher als fest behandelt. Bei Verdrehung des Kristalls um den Winkel  $\Gamma$  wird sich diese verändern. Es ist leicht ersichtlich, dass sich die Korrugation bei Vergrößerung von  $\Gamma$  verkleinert.

Durch die Verdrehung des Kristalls um den Winkel  $\Gamma$  verändert sich der effektive Einfallswinkel  $\Omega_i$ , sowie dessen Projektion  $\Theta_i$  auf eine gedachte Detektorebene vor dem Kristall. Diese sei parallel zur Detektorebene hinter dem Kristall. Für den Winkel  $\Theta_i$  gilt, wie man sich durch Überlegungen zur Streugeometrie klar machen kann,

$$\cos(\Theta_i) = \sqrt{1 - \frac{\tan^2(\Gamma)}{\tan^2(\Omega_i)}} \quad (5.27)$$

Gleichung (5.27) kann weiterhin umgeformt werden, sodass man letzten Endes erhält:

$$\cos(\Theta_i) = \sqrt{1 - \frac{\tan^2(\Gamma)}{\tan^2(\Gamma) + \tan^2(\Phi_{in})}} \quad (5.28)$$

Diese Beziehung soll als Maß für die Verkleinerung der Korrugation bei Verdrehung benutzt werden. Hier soll eine einfache Proportionalität zu  $\cos(\Theta_i)$  angenommen werden mit der Proportionalitätskonstante  $\alpha$ . Zusätzlich muss bedacht werden, dass die hier beschriebene Rechnung für die Näherung der Harten-Wand sowie in Eikonalnäherung gilt. Sie selbst stellt also schon eine grobe Näherung der Realität dar. Dennoch liefert das Modell einen Einblick in das Verhalten der Korrugation des Wechselwirkungspotentials bei Verdrehung um den Winkel  $\Gamma$ . Die maximale Korrugation ergibt sich dann mit  $\varsigma_{eff} = \varsigma_{max} \cdot \alpha$  zu

$$\varsigma_{max}(\Gamma) = \varsigma_{eff} \sqrt{1 - \frac{\tan^2(\Gamma)}{\tan^2(\Gamma) + \tan^2(\Phi_{in})}} \quad (5.29)$$

Dieses Modell hat seine Gültigkeit, falls sich das Wechselwirkungspotential als Harten-Wand-Potential beschreiben lässt, bzw. es sich um eine sinusförmige Korrugation handelt. Gleichung (5.26) wurde für den zweidimensionalen Fall für die Beschreibungen verschiedener Messungen erfolgreich angewendet [23, 42, 46, 47, 78, 158, 159]. Im folgenden wird die so entwickelte Theorie auf die Messungen an den beiden Saphir-Flächen (11 $\bar{2}$ 0) und (0001) angewendet werden.

## 5.2 Die $\alpha$ - $Al_2O_3$ $a$ -plane

### 5.2.1 Experimentelle Grundlagen

Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Kristalle haben ihr Anwendungsgebiet in der Mikroelektronik, zum Beispiel als Dielektrikum [157, 160], und vor allem in der Katalyse [156, 161, 162]. Weiterhin dienen sie als Substrat für Metall-Partikel [156], -Cluster [157] und dünne Filme [163–166], sowie für das Wachstum von Halbleitern [163, 164, 166]. Ein besonders interessantes Anwendungsgebiet ist das Wachsen von Nanodrähten auf Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Substraten. Dieses System wird als Modell-System für das Wachstum weiterer mikroelektronischer Bauelemente, bzw. Bauelemente reduzierter Dimensionalität [164, 167, 168] angesehen.

Aus der Literatur sind mehrere Rekonstruktionen der Oberfläche, die sich beim Ausheilen des Kristalls bei hohen Temperaturen ausbilden, bekannt. Die wichtigste für die hier durchgeführten Experimente, ist die bereits angesprochene (12x4)-Rekonstruktion, die sich beim Ausheilen des Kristalls bei Temperaturen von  $T = 1200 - 1400^\circ$  ausbildet [156, 157, 163, 169]. Die Rekonstruktion bildet sich durch die Desorption von Sauerstoff aus der obersten Lage, sodass die Einheitszelle durch Ketten von Sauerstofffehlstellen gebildet wird [163, 168]. Die Einheitsvektoren spannen einen Winkel  $\beta = 57.5^\circ$  auf und haben die Längen  $a_1 = 61.44 \text{ \AA}$  und  $a_2 = 32.96 \text{ \AA}$  [157]. Eine Strukturskizze ist in Abbildung 5.4 gezeigt.

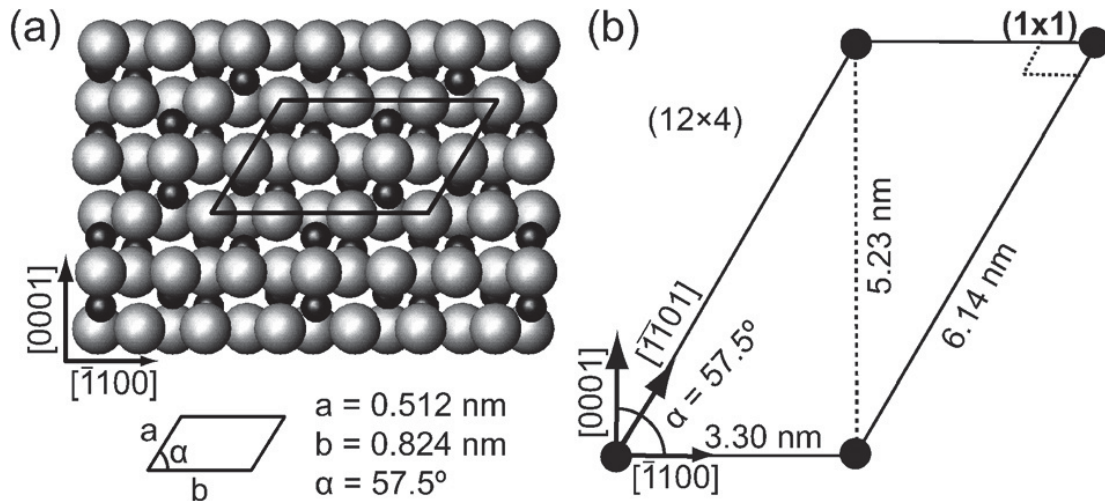


Abbildung 5.4: (a) Aufsicht auf die unrekonstruierte Saphir-(1120)-Fläche. Die Einheitszelle ist als Rhomboeder eingezeichnet mit den Seitenlängen  $a$  und  $b$ . Graue-Kugeln stellen die Sauerstoff-, kleine schwarze Kugeln die Aluminium-Ionen dar. (b) Schematische Einheitszelle der (12x4)-Rekonstruktion der Saphir-(1120)-Fläche. Der kleine Rhomboeder in der oberen, rechten Ecke stellt die (1x1)-Einheitszelle dar. (Bild aus [157] entnommen)

### 5.2.2 Probenpräparation

Die Kristalle wurden als „Rohlinge“ von der Firma *CrysTec* geliefert. Sie hatten einen Durchmesser von 10 mm und eine Höhe von 7 mm. Die Fehlorientierung wurde mit jeweils maximal  $\pm 0.1^\circ$  angegeben. Zunächst wurden die Kristalle *ex situ* von J. Sölle im Präparationslabor des Institutes für Physik der Humboldt-Universität zu Berlin durch die mechanische Politur mit Korngrößen von 20 bis  $0.05 \mu\text{m}$  bearbeitet. Weiterhin erhielten die Kristalle eine Nut, um sie später im Probenhalter mittels eines Tantaladrahtes halten zu können.

Die Präparation der Stirnseite der Kristalle erfolgte jeweils über die Läppung mit Bornitrid in drei Schritten mit Korngrößen von 20, 12 und  $5 \mu\text{m}$ . Danach wurden die Kristall-Stirnflächen mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Körnern der Größe 1.2 und  $0.55 \mu\text{m}$  sowie  $\text{SiO}_2$ -Körnern der Größe  $0.05 \mu\text{m}$  poliert.

Die durch die Präparation optisch spiegelnden Kristalle wurden dann auf dem Probenhalter montiert und in das Vakuum überführt. In Anlehnung an die Literaturangaben und in Analogie zu [41, 155], wurde der Kristall im UHV ausgeheilt und die Oberflächenqualität mittels der Aufnahme von Streuverteilungen überprüft. So war es zwar möglich, die Oberfläche für die Messungen mit FAD ausreichend zu präparieren, jedoch wurden dabei die Kristalle zerstört. In Abbildung 5.5 erkennt man, dass der Kristall komplett gebrochen war. Jede Hälfte für sich zeigte dennoch weiterhin eine gute Oberflächenqualität. Der Grund für das Spalten der Kristalle war vermutlich, dass ein hoher Anteil des Kristallvolumens aus dem Probenhalter heraus ragte. So entstanden beim Abkühlen nach den Ausheilschritten über das Kristallvolumen Spannungen, die letztlich zur Spaltung des Kristalls führten.

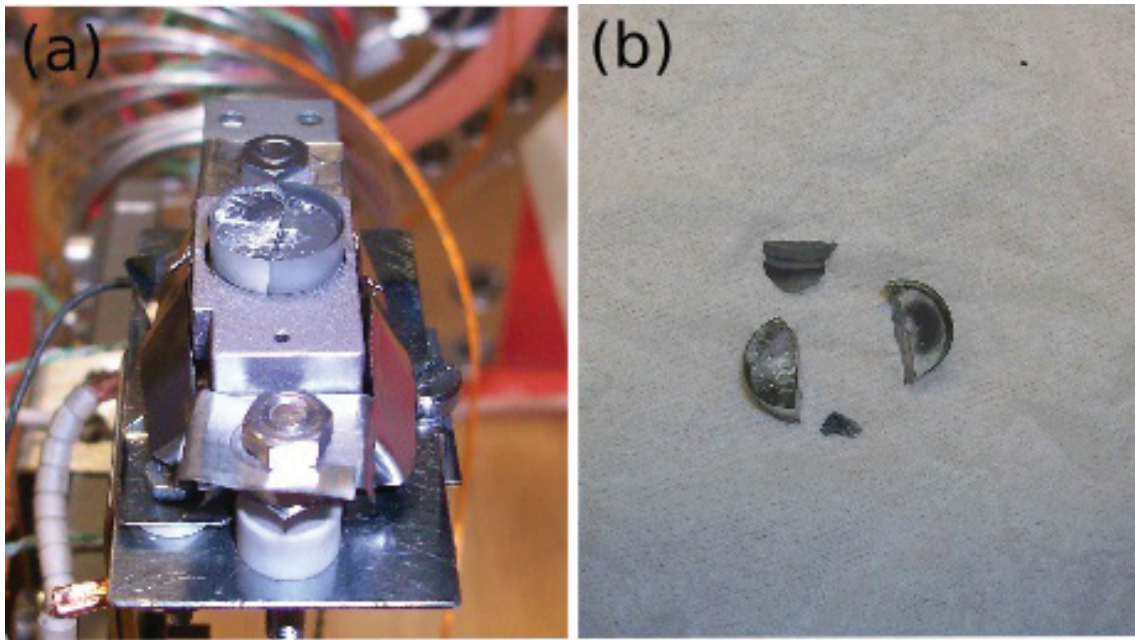


Abbildung 5.5: Bilder des nach dem Ausheilen zerstörten Kristalls (a) direkt nach dem Ausbau aus dem UHV, noch im Probenhalter. (b) nach dem Ausbau aus dem Probenhalter. Der Bruch des Kristalls erstreckte sich über das gesamte Volumen, sodass der Kristall nach dem Ausbau direkt „zerfiel“.

Um dieses Problem zu umgehen, wurde von *G. Lindenberg* ein Hitzeschild angefertigt. Dieses bestand aus speziell angefertigten Tantal-Blechen. Zunächst umgeben Tantal-Bleche das Filament, um die Wärmeabstrahlung in die Umgebung zu minimieren. Weiterhin wurde der Kristall mit einem Tantal-Blech ummantelt, um ein über das Volumen gleichmäßiges Abkühlen des Kristalls zu gewährleisten. Der Kristall und die Probenhalterung wurden zusätzlich mit Tantal-Blechen versehen. Um eine Wärmeabstrahlung des Kristalls an die Umgebung und somit die mögliche Schädigung der Detektoren zu verhindern, wurde weiterhin eine Haube aus Tantal-Blechen angefertigt, die während des Ausheilens über den Kristall gestülpt wurde. Sollte die Temperatur des Kristalls bestimmt werden, wurde die Haube nicht verwendet. Bilder dieses Hitzeschildes sind in Abbildung 5.6 gezeigt.

So konnten die Kristalle problemlos bei Temperaturen von bis zu  $2000^\circ\text{C}$  ausgeheilt werden. Die Temperatur wurde über ein Pyrometer kontrolliert. In Abbildung 5.7 sieht man den Fortschritt der Qualität der Beugungsbilder für den fortschreitenden Präparationsprozess für die Streuung von  $\text{H}_2$ -Projektilen entlang der  $(1100)$ -Richtung mit Energien von  $E = 2000$  bzw.  $1000$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.78^\circ$ . Man sieht die Evolution von einem völlig ausgeleuchteten MCP bishin zu einer definierten Streuverteilung nach dem Ausheilen des Kristalls bei  $T = 1700^\circ\text{C}$  für  $t = 2$  min (im UHV).



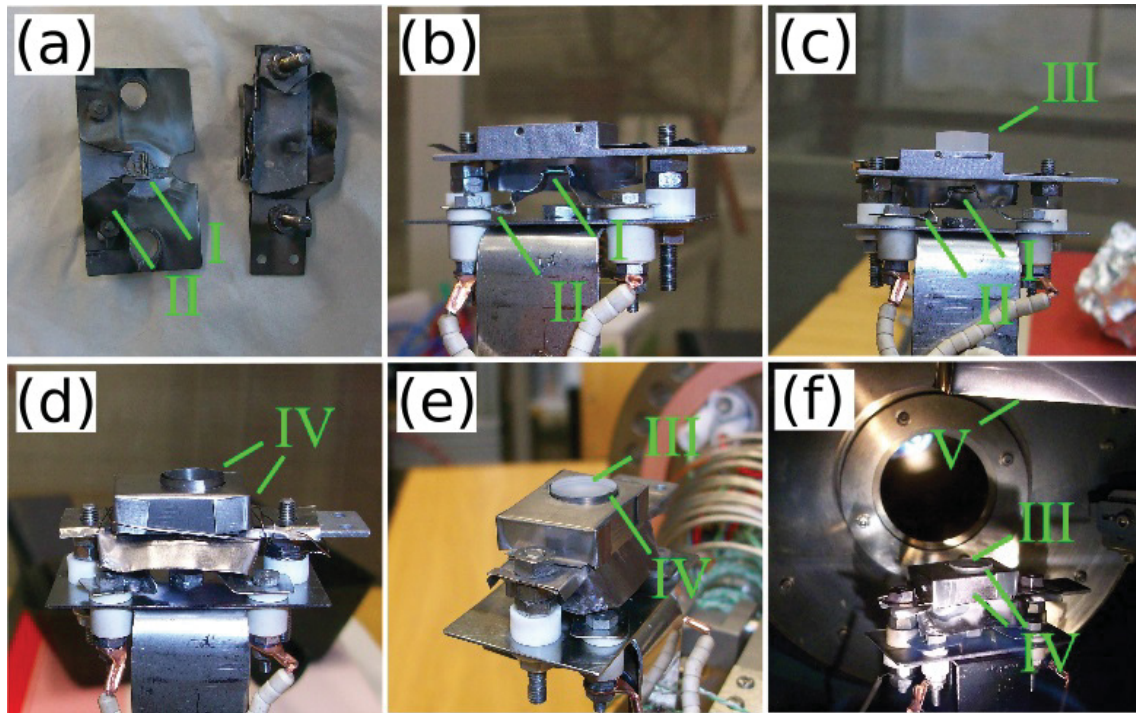


Abbildung 5.6: Der Hitzeschild für die Saphir-(1120)-Kristalle. (a) Das Filament *I*, welches von zwei dünnen Tantal-Blechen *II* gehalten wird. Das Filament wurde aus einer Halogen-Lampe entnommen. Die Bleche sind lediglich an das Filament geklemmt. Durch den Strom, der beim Ausheilen an das Filament angelegt wird, wird selbiges beim ersten Ausheilen an die Bleche durch die entstehende Wärme geschweißt. Ebenfalls ist das Tantal-Blech, das später das Filament abschirmen wird, auf der rechten Bildseite zu sehen. (b) Der Probenhalter aus Tantal, aufgesetzt auf die Probenheizung. (c) Ein Saphir-(1120)-Kristall *III* in den Probenhalter eingesetzt und mit einem Tantal-Draht fixiert. (d) Der Tantal-Ring um den Kristall und die zusätzlichen Tantal-Bleche *IV* um den Kristall und den Probenhalter. (e) Kompletierter Aufbau aus Probenhalter, Kristall und Hitzeschild. (f) Kompletierter Aufbau, ins UHV überführt. Ansatzweise ist die Tantal-Haube *V* für das Überstülpen über den Kristall beim Ausheilen zu erkennen.

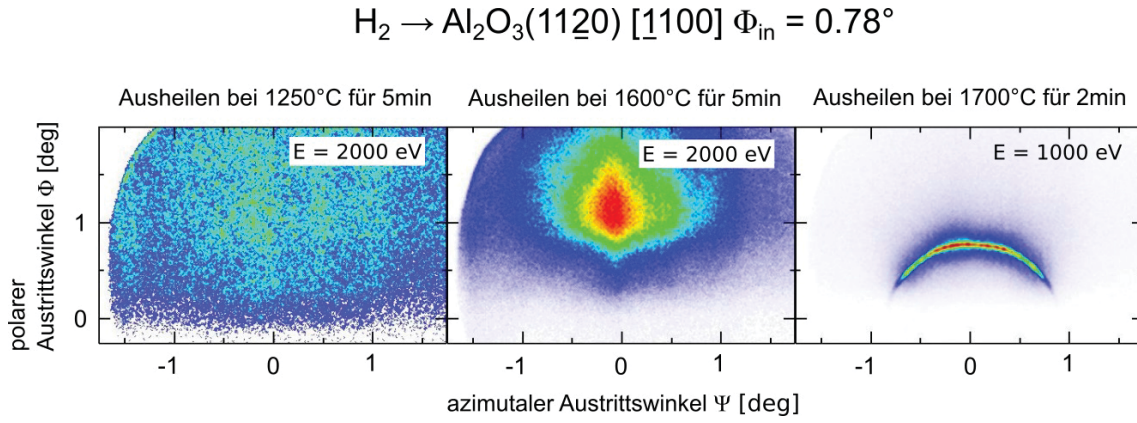


Abbildung 5.7: Fortschritt der Oberflächenqualität, überprüft durch die Streuung von  $\text{H}_2$ -Projektilen entlang der  $[\bar{1}100]$ -Richtung mit Energien von  $E = 2000$  bzw.  $1000$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.78^\circ$ . Man sieht die Evolution von einem völlig ausgeleuchteten MCP bis hin zu einer hoch-definierten Streuverteilung.

### 5.2.3 Ergebnisse und Diskussion

Nachdem es nun möglich war, definierte, atomar glatte Oberflächen zu erzeugen, konnten Beugungsbilder für verschiedene Projektilen entlang der  $[\bar{1}100]$ -Richtung mit unterschiedlichen azimutalen Verdrehungen  $\Gamma$  aufgenommen werden. Eine Zusammenstellung der Messungen findet sich in Abbildung 5.8 für  $H$ -,  $D$ - sowie  $\text{H}_2$ -Projektilen mit Energien von jeweils  $E = 500$  eV. Es zeigte sich, dass bereits für  $\text{H}_2$ -Projektilen keinerlei Beugungsreflexe aufzulösen sind, da deren Abstand zueinander aufgrund der Einheitszellengröße selbst bei entsprechenden Verdrehungen zu klein ist. Die Beugungsreflexe der Messungen mit  $H$ -Projektilen hingegen zeigen selbst für große Auslenkungen  $\Gamma$  ein hohes Maß an Definition, sowohl polar, als auch azimutal. Die sehr deutliche Aufspaltung der Beugungsreflexe ist geeignet für die weitere Auswertung. Messungen mit schwereren Projektilen wie  $\text{He}$ ,  $\text{N}$ ,  $\text{Ne}$  sowie  $\text{Ar}$  wurden ebenfalls durchgeführt, werden aber aufgrund des geringen Informationsgehaltes nicht gezeigt. Wie schon für  $\text{H}_2$ -Projektilen, waren weder die einzelnen Bragg Ordnungen, noch die einzelnen Laue-Kreis Ordnungen für höhere  $\Gamma$  aufzulösen.

Für eine effektivere Auswertung der Messdaten bezüglich der Positionen der Beugungsreflexe sowie deren Intensität wurde eine Prozedur in *MathWorks Inc. Matlab* geschrieben, die im folgenden vorgestellt werden soll. Ein Screenshot des Programmes ist in Abbildung 5.9 zu sehen.

Das Programm hat drei Hauptfunktionen. Im Bereich *A* werden einfache Berechnungen zu den Positionen der Beugungsreflexe für die Flächen  $(11\bar{2}0)$  und  $(0001)$  durchgeführt. Die Basisparameter der Berechnungen sind in den Feldern *I* bis *III* für die  $(11\bar{2}0)$ -Fläche die Gittervektoren der rekonstruierten Fläche, also  $12 \cdot |\vec{a}_1|$  und  $4 \cdot |\vec{a}_2|$ , sowie der Winkel  $\beta$ , der von beiden Vektoren  $\vec{a}_1$  und  $\vec{a}_2$  aufgespannt wird. Weitere Randbedingungen sind, neben dem Einfallswinkel, dem Verdrehungswinkel  $\Gamma$ , der Projektillmasse und -energie, die Anzahl der zu berechnenden Laue-Kreis und Bragg Ordnungen. Die so berechneten Reflexpositionen werden in Grafikenster 1 eingezeichnet und bei Bedarf in Grafikenster 2 auf die Messung projiziert. So wird ein erster Vergleich zwischen Experiment und Berechnungen möglich.



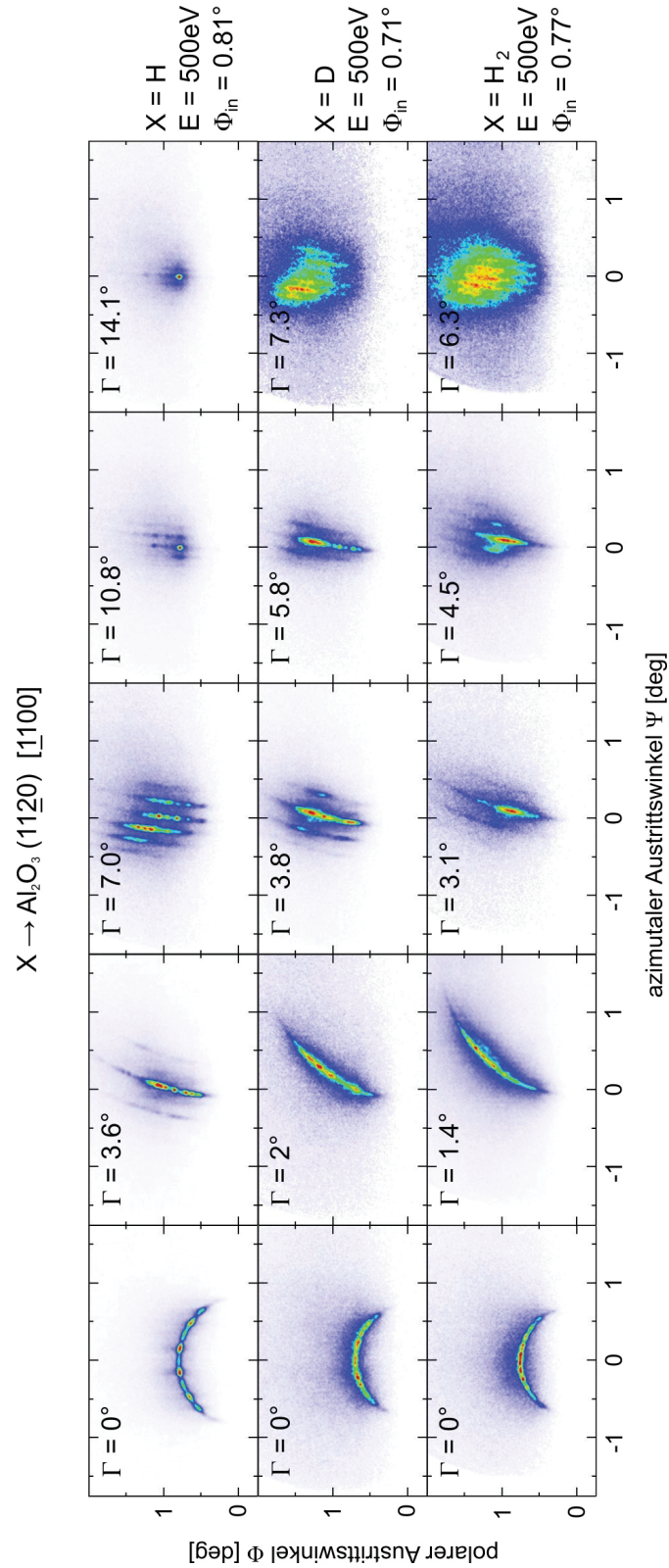


Abbildung 5.8: Zusammenstellung der Streuung von verschiedenen Projektilen, jeweils mit der Energie  $E = 500$  eV, an der Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Fläche entlang der  $[\bar{1}100]$ -Richtung für verschiedene Verdrehungswinkel  $\Gamma$ . obere Reihe: H-Projektile, mittlere Reihe: D-Projektile, untere Reihe: H<sub>2</sub>-Projektile.

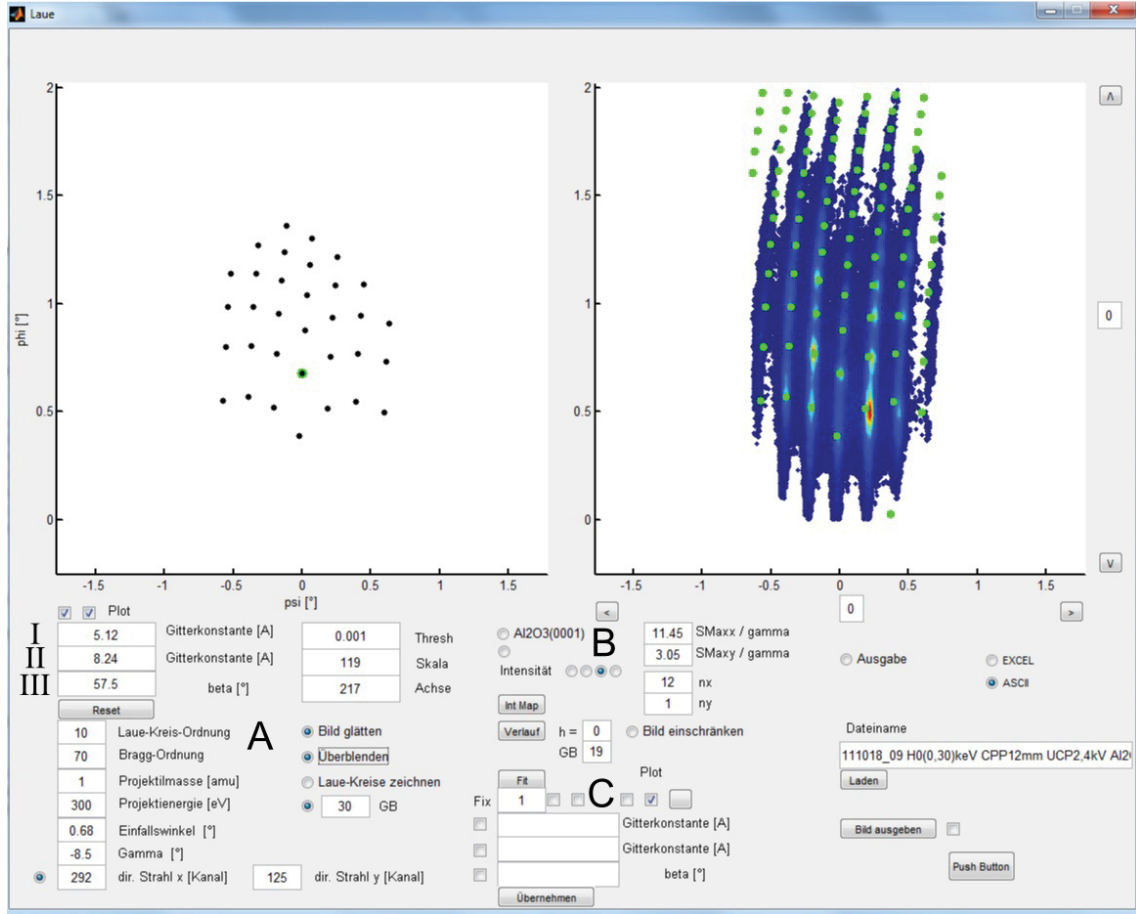


Abbildung 5.9: Screenshot des Programms, erstellt für die Auswertung der Messungen zur longitudinalen Kohärenz an den  $\alpha$ - $Al_2O_3$ -Flächen (11 $\bar{2}$ 0) und (0001). Für Details zu den einzelnen Funktionen, siehe Text.

Im Bereich *B* wird ausgewählt, wie die Intensität der Beugungsreflexe zu berechnen ist. Es wurden nur die Formen 3 und 4 verwendet. In 4 werden die Intensitäten in Form einer Gaussfunktion berechnet. Ausgehend vom Reflex  $(h, k) = (0, 0)$  werden alle Intensitäten nach

$$I \sim \exp \left( - \left( \frac{(\Psi_{hk} - \Psi_{00})^2}{2\sigma_{\Psi}^2} + \frac{(\Phi_{hk} - \Phi_{00})^2}{2\sigma_{\Phi}^2} \right) \right)$$

berechnet. Die Breiten  $\sigma_{\Psi, \Phi}$  werden empirisch festgelegt. Diese Näherung vernachlässigt jedoch völlig die Wechselwirkung zwischen den Projektilen und die somit entstehenden Interferenzeffekte. Sie dient lediglich dazu, die Berechnungen auf einfache Weise optisch an die Intensitätsmodulation der Messung anzupassen. In 3 wird daher das vorgestellte Modell von *Garibaldi et al.* und somit Gleichung (5.26) verwendet. Um der endlichen Ausleuchtung im Experiment Rechnung zu tragen, wird die Intensitätsverteilung der Beugungsreflexe mit einer Gauss-Funktion gefaltet. Die Breite dieser Gauss-Verteilung lässt sich im Feld *GB* festlegen. Die Größen  $n_x$  und  $n_y$  sind die Ordnungen der Besselfunktionen, wie in Gleichung (5.26) die Größen  $m_x$  und  $m_y$ .

Mit den Bereichen *A* und *B* können nur qualitative Aussagen getroffen und subjektive Anpassungen vorgenommen werden. Quantitative Analysen sind über den

Bereich  $C$  möglich. In diesem Bereich werden die jeweiligen Basisparameter so angepasst, dass die berechneten Positionen der Beugungsreflexe bestmöglich mit denen der Messung übereinstimmen. Die Anpassung erfolgt über mehrere Schritte.

### Schritt 1: Festlegung der Startparameter.

Über die Parameter aus Bereich  $A$  werden die Positionen  $\Psi_{hk}$  und  $\Phi_{hk}$  der einzelnen Beugungsreflexe mit den Gleichungen (5.3) und (5.4) berechnet. Sie können dabei bei Bedarf über Vergleiche mit den experimentellen Daten angepasst werden. Die so eingestellten Parameter stellen die Startparameter für die Regression dar. Insbesondere der Einfallswinkel  $\Phi_{in}$  und der Verdrehungswinkel  $\Gamma$  spielen hier eine wichtige Rolle und haben einen erheblichen Einfluss auf die Positionen der Beugungsreflexe.

### Schritt 2: Zuordnung der Beugungsreflexe.

Sind die Startparameter festgelegt, müssen die Beugungsreflexe aus dem Experiment extrahiert und den jeweiligen Laue-Kreis und Bragg Ordnungen zugeordnet werden. Dies wurde auf zwei verschiedene Arten implementiert. In der ersten Variante werden ausgehend von den errechneten Positionen der Beugungsreflexe jeweils in einem gewissen Umkreis um die Reflexe nach dem jeweiligen Maximum der Intensität im experimentellen Spektrum gesucht. Wird ein Maximum gefunden, können ihm die Laue-Kreis und Bragg Ordnungen  $(h, k)$  zugeordnet werden. Die zweite Variante entnimmt dem experimentellen Spektrum Intensitätswerte jeweils aus einem gewissen Umkreis um die theoretischen Beugungsreflexe herum. An diese wird eine Gauß-Verteilung angepasst, aus der man dann die Position des Reflexes entnehmen und die Ordnungen  $(h, k)$  zuordnen kann. Die erste Variante liefert kleinere Unsicherheiten, ist jedoch gegen lokale Maxima anfällig, die durch experimentell bedingte Schwankungen in der Intensitätsverteilung entstehen. Die zweite Variante ist stabiler gegenüber lokalen Maxima, benötigt aber mehr Rechenzeit. Ebenfalls ist die Anpassung einer Gauß-Funktion schwierig, sollte nur eine ansteigende Flanke der Intensität im Auswahlbereich gefunden werden. Es ist also sehr wichtig die Berechnungen schon vor der Regression optisch möglichst gut an die Messung anzupassen. Die Genauigkeit des Vorgehens kann entscheidend durch den Parameter „Thresh“ beeinflusst werden. Er bezeichnet eine untere Grenze (Threshold), unterhalb der die Intensitäten nicht gezählt werden. Den Parameter wählt man so, dass der Untergrund bestmöglich unterdrückt wird, jedoch die schwachen Beugungsreflexe nicht ausgeblendet werden.

Die so erstellte Liste aus der Zuordnung der experimentellen Beugungsreflexe zu den theoretisch erwarteten Positionen wird dann der eigentlichen Regressions-Prozedur übergeben.

### Schritt 3: Die Regression.

Für die Regression wird das *Matlab*-interne Programm „lsqcurvefit“ verwendet, welches eine Funktion für die Anpassung nicht-linearer Funktionen darstellt. Im Bereich  $C$  kann festgelegt werden, welche der Parameter angepasst werden sollen. Bei der (1120)-Fläche wurden in der Regel keine der drei Parameter fix gehalten.

Es wurden zwei Varianten der Regression implementiert. Es ist einerseits möglich, eine vektorielle Regressions-Funktion zu erstellen, sodass (5.3) und (5.4) gleichzeitig

angepasst werden. Andererseits ist es auch möglich (5.3) und (5.4) nacheinander und abwechselnd anzupassen, bis eine gewisse Toleranz erreicht ist. In der Regel stellte sich die erste Variante als genauer dar.

Projektil	$H$	$D$	Literatur
$ \vec{a}_1 $	$(62.05 \pm 0.92) \text{ \AA}$	$(63.6 \pm 2.5) \text{ \AA}$	$61.44 \text{ \AA}$
$ \vec{a}_2 $	$(33.35 \pm 0.13) \text{ \AA}$	$(34.23 \pm 0.3) \text{ \AA}$	$32.96 \text{ \AA}$
$\beta$	$(57.5 \pm 1.3)^\circ$	$(58 \pm 4)^\circ$	$57.5^\circ$

Tabelle 5.1: Auswertung der Längen der Gittervektoren  $\vec{a}_1$  und  $\vec{a}_2$  sowie des von ihnen eingeschlossenen Winkels  $\beta$  aus der Regression für die Messungen mit  $H$ - und  $D$ -Projektilen an der (12x4)-Rekonstruktion der Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Fläche. Referenzwerte aus [157].

Auf diese Weise konnte eine Fülle von Messungen effektiv analysiert werden. Auswertbare Spektren fanden sich für die Messungen mit  $H$ - und  $D$ -Projektilen. Eine Zusammenstellung von Beispielmessungen mit den jeweiligen Ergebnissen der Regressionen befindet sich in Abbildung 5.10. Man erkennt, dass es eine gute Übereinstimmung zwischen den Messungen und den Regressionen gibt. Die für verschiedene Energien und Verdrehungen  $\Gamma$  ausgewerteten Messungen mit verschiedenen Projektilen liefern Parameter, wie sie in Tabelle 5.1 zusammengefasst sind. Man erkennt neben der guten Anpassung in den Abbildungen eine hervorragende quantitative Übereinstimmung zwischen den Messungen und der Theorie.

Neben der Bestätigung der Ergebnisse aus [41, 155], konnte die Genauigkeit der Messungen und der Auswertung verbessert werden. Ferner wurden die Messungen mit  $H$ -Projektilen um Messungen mit  $D$ -,  $H_2$ - und  $He$ -Projektilen erweitert. Es zeigte sich, dass das Phänomen der longitudinalen Kohärenz sehr glatte Flächen mit langwelligen Modulationen des Höhenprofils der Einheitszelle erfordert. Durch die dafür nötigen großen Einheitszellen, nimmt jedoch der Abstand der Bragg-Reflexe auf den jeweiligen Laue-Kreisen ab. So können die Bragg-Reflexe selbst für große Auslenkungen  $\Gamma$  für Projektilen wie  $He$  und schwerere Atome nicht mehr aufgelöst werden. Die Beobachtung des Auftretens von Laue-Kreisen höherer Ordnung ist also empfindlich von der die longitudinale Kohärenz erzeugenden Einheitszelle und den verwendeten Projektilen abhängig.

Nachdem die Gitterparameter mit hoher Präzision bestimmt wurden, wurde die Korrugation des Wechselwirkungspotentiales untersucht. Mit (5.26) können über die Anpassung der Korrugation die Intensitäten der Beugungsreflexe für Verdrehungen um  $\Gamma$  für verschiedene Energien, Einfallswinkel und Projektilen bestimmt werden. Anhand des Modells (5.26), (5.24) und (5.29) fand eine Anpassung an Beugungsspektren aus Messungen mit  $H$ -Projektilen entlang der  $[1100]$ -Richtung mit der Energie  $E = 300 \text{ eV}$  für verschiedene Verdrehungen  $\Gamma$  und Einfallswinkel  $\Phi_{in}$  statt. Der Einfallswinkel variierte, da die Intensität des spekularen Reflexes modulierte und so eine eindeutige Bestimmung und Einstellung des Einfallswinkels nicht für jede Verdrehung  $\Gamma$  möglich war. In Abbildung 5.11 sind fünf Beispielmessungen im Vergleich mit der jeweiligen berechneten Beugungskarte dargestellt. Die Intensitäten sind jeweils normiert. Für die Auswertung wurde von  $\varsigma_{max} \neq \varsigma_{max}(\Phi_{in})$  ausgegangen. Bedenkt man die Einfachheit des Modells durch die Behandlung des Wechselwirkungspotentials als Harte-Wand, sind sehr gute Übereinstimmungen zwischen Berechnung und

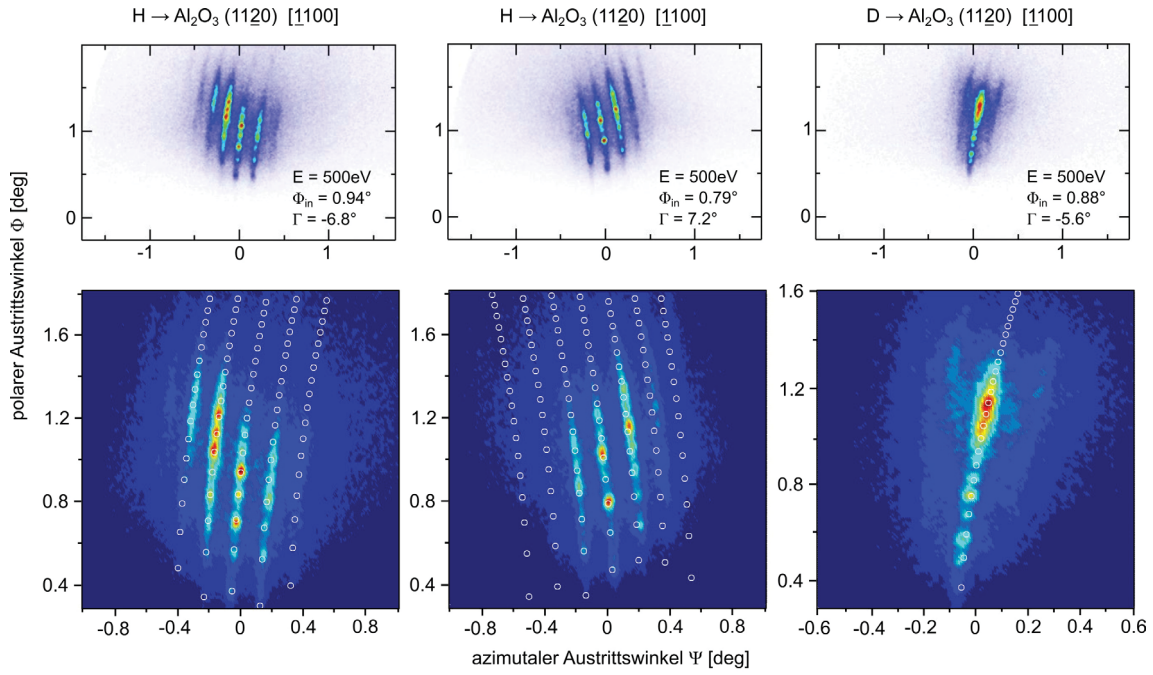


Abbildung 5.10: Zusammenstellung von Beispielmessungen und -regressionen für die Streuung mit  $H$ - und  $D$ -Projektilen entlang der  $[1100]$ -Richtung (obere Reihe) für Energien von  $E = 500$  eV für verschiedene Einfallswinkel  $\Phi_{in}$  und Verdrehungen  $\Gamma$  mit den dazugehörigen Ergebnissen der Regression, als weiße Kreise über die farb-kodierte Messung gelegt.

Messung festzustellen. Insbesondere werden die Messungen für die Verdrehungen  $\Gamma = 0^\circ, -2.6^\circ, -5.7^\circ$  und  $-7.5^\circ$  hervorragend wiedergegeben.

In Abbildung 5.12 findet sich eine Übersicht über die Anpassungen für verschiedene Verdrehungen  $\Gamma$ , jeweils für die Korrugation  $\varsigma_x$  (blaue Kreise) entlang und  $\varsigma_y$  (rote Kreise) senkrecht zur Streurichtung. Dargestellt ist die relative Korrugation  $\frac{\varsigma_{x,y}(\Gamma)}{\varsigma_{x,y}(\Gamma=0^\circ)}$ . Die Erwartungswerte wurden nach (5.29) berechnet. Die Welligkeit der Referenzkurve entsteht durch den nicht konstanten Einfallswinkel  $\Phi_{in}$ . Die experimentellen Werte folgen perfekt dem Kurvenverlauf der Erwartungswerte. Es zeigt sich also auch hier, dass eine Beschreibung des Oberflächenpotentials in der Harten-Wand-Näherung möglich ist. Das Modell zur Winkelabhängigkeit der Korrugation von der Verdrehung  $\Gamma$  liefert eine exzellente Beschreibung des Experimentes. Eine Verbesserung des Modells könnte erzielt werden, indem man die offensichtliche Abhängigkeit  $\varsigma_{max} = \varsigma_{max}(E_\perp) = \varsigma_{max}(E, \Phi_{in})$  in das bestehende Modell integriert. Eine experimentelle Bestimmung der Abhängigkeit könnte durch die Anpassung von Beugungsspektren bei  $\Gamma = 0^\circ$  für verschiedene Einfallswinkel erfolgen.



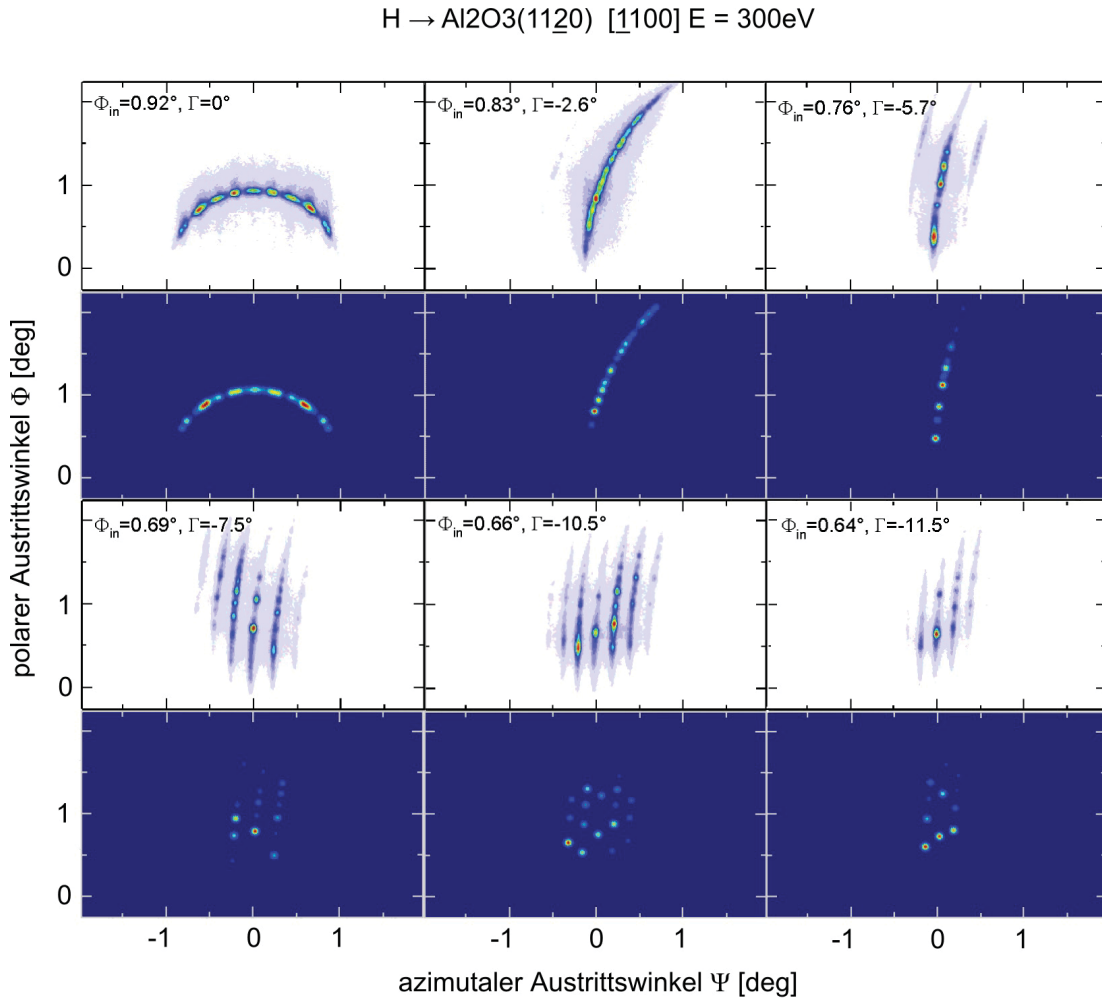


Abbildung 5.11: Beispielmessungen für die Streuung von  $H$ -Projektilen an der Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Fläche entlang der  $[\bar{1}100]$ -Richtung für verschiedene Einfallswinkel  $\Phi_{in}$  und Verdrehungen  $\Gamma$ , mit den jeweiligen Abbildungen der berechneten Intensitätsverläufe.

## 5.3 Die $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ $c$ -plane

### 5.3.1 Experimentelle Grundlagen

Nach dem erstmaligen Nachweis der longitudinalen Kohärenz bei der streifenden Streuung von Atomen an der (11 $\bar{2}$ 0)-Fläche, lag es nahe die ebenfalls in der Literatur viel behandelte (0001)-Fläche zu untersuchen.

Die unrekonstruierte  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001)-Fläche ist für viele Anwendungen von Bedeutung. Die Fläche wird als Substrat für das Aufwachsen von Hochtemperatursupraleiter-, Metall-, Halbleiter- und Isolatorschichten, vornehmlich mit MBE oder mit MCVOD gewachsen, sowie als Katalysator und als Dielektrikum in der Mikroelektronik verwendet [3, 170–183].

Die prominenteste Verwendung der Saphir-(0001)-Fläche ist jedoch als Substrat für das Aufwachsen von Gruppe-III-Nitrid-Halbleitern, die als Leuchtdioden (Light Emitting Diodes, LEDs) und Laserdioden (LDs) Anwendung finden [184–188]. Die bekanntesten Beispiele sind dabei die LEDs und LDs auf Basis von  $\text{GaN}$ . Es ist



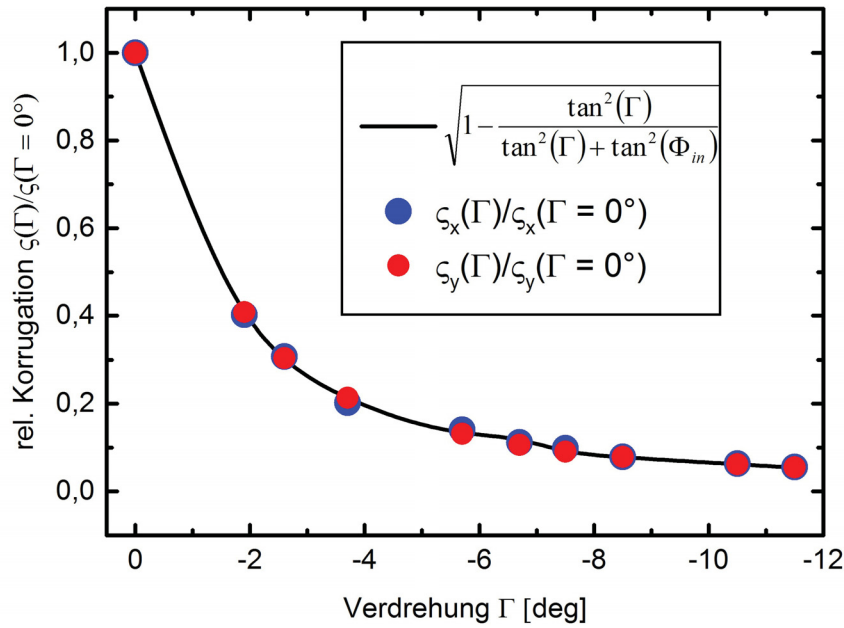


Abbildung 5.12: Vergleich der relativen Korrugationen  $\frac{\zeta(\Gamma)}{\zeta(\Gamma=0)}$  in  $x$ - (blaue Kreise) und  $y$ -Richtung (rote Kreise) mit dem erwarteten Verlauf in Abhängigkeit von der Verdrehung  $\Gamma$  aus der  $[1100]$ -Richtung der Saphir-(1120)-Fläche für die Streuung von  $H$ -Projektilen. Die Korrugationen wurden über die Anpassung der Intensitäten zwischen Experiment und Berechnung aus dem Modell (5.26), (5.24) und (5.29) bestimmt.

schwierig für die Gruppe-III-Halbleiter gitterangepasste Substrate zu finden [187]. Das homo-epitaktische Wachstum von  $GaN$ -Volumenkristallen wird dadurch erschwert, dass sich die Kristalle bei Temperaturen von  $1000^\circ\text{C}$  zersetzen. Versuche der Herstellung von  $GaN$ -Filmen mittels Homo-Epitaxie führten zwar zu einer Verringerung der Defektdichte aufgrund der besseren Gitteranpassung, jedoch konnten keine Filme zufriedenstellender Qualität erzeugt werden [189]. Die am verbreitetsten Substrate sind bisher Saphir-(0001)-Kristalle, trotz einer Gitterfehlانpassung von 16% [171, 175, 185, 186, 188–192]. So konnten unter anderem violette [190], blaugrüne [192] sowie blaue [191] LEDs hergestellt werden.

Neben den genannten Anwendungen wird in der Literatur auch vom Wachstum von Diamanten [193] sowie Nanoröhren und Nanodrähten [154] auf Saphir-(0001)-Substraten berichtet. Für letztere wird die Facettierung der Oberfläche ausgenutzt. Die Nanoröhren wachsen entlang dieser Facetten, bevorzugt wenn diese sich entlang niedrig-indizierter Richtungen bilden, aber auch entlang von Random-Richtungen [154]. Saphir-(0001)-Kristalle stellen ein Modellsystem für die Untersuchung der Bildung von Facetten ausgehend vom Zusammenschluss von Stufenkanten auf der Oberfläche dar [149–154]. Dieser Vorgang und die Höhe der Kanten der Facetten sowie deren Weite hängen dabei stark von der Fehlorientierung des Kristalls ab [153, 154].

Die  $\alpha$ -Phase von  $Al_2O_3$  ist für hohe Temperaturen die stabilste Phase des Saphirs [194]. In der Literatur werden im Wesentlichen zwei Strukturen der  $\alpha$ - $Al_2O_3$ (0001)-Fläche diskutiert. Zum einen handelt es sich um die (1x1)-Fläche, die aufgrund der nicht restlos geklärten Oberflächenterminierung bis heute ein reges Interesse auf

sich zieht [149, 170–172, 195–198]. Die Einheitszelle zeigt eine hexagonale Struktur mit den Gitterparametern  $a = 4.759 \text{ \AA}$  und  $c = 12.990 \text{ \AA}$  und enthält sechs Formeleinheiten  $Al_2O_3$ . Die Sauerstoffionen bilden hexagonale Schichten aus, zwischen denen zwei Drittel der oktaedrischen Lücken von Aluminiumionen besetzt werden. Sowohl die Aluminium-, als auch die Sauerstoffionen zeigen Relaxationen bezogen auf die idealen Positionen im Volumenkristalls [149]. Diese Struktur ist bis zu einer Ausheiltemperatur von etwa  $1000^\circ\text{C}$  im UHV stabil, bevor sie sich für höhere Ausheiltemperaturen in eine  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) Rarctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion umwandelt. Diese Rekonstruktion der Oberfläche ist reversibel.

Beim Ausheilen in einer Sauerstoffatmosphäre bildet sich erneut die (1x1)-Struktur aus [149, 160, 174, 178, 179, 195, 197–203]. Dass sich die  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) Rarctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion aufgrund von Verunreinigungen bildet, kann ausgeschlossen werden [174]. Die Bildung der  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) Rarctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion wird so erklärt, dass die (1x1)-Rekonstruktion eine Aluminium-Terminierung aufweist [170–172, 178, 179, 198, 202, 204]. Beim Ausheilen im UHV, also in reduzierender Atmosphäre, verdampfen die obersten beiden Lagen Sauerstoff [149, 160, 178, 179]. Die oberste Lage Aluminium-Atome bilden dann eine  $Al(111)$ -Fläche aus. Die Gitterkonstante dieser Fläche ist inkommensurabel zur  $Al_2O_3(0001)$ -Unterlage. Dies wird durch Drehung der  $Al(111)$ -Flächen um einen Winkel von  $\arctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$  ausgeglichen [173, 174, 179, 195]. Dieses Modell wird unter anderem dadurch bestätigt, dass in XPS-Messungen an der Oberfläche der  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) Rarctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion metallisches Aluminium nachgewiesen werden konnte [195]. Dieses bildet beim Ausheilen in Sauerstoffatmosphäre bei den selben Temperaturen eine wohl-geordnete (1x1)-Oberfläche aus [160], bei denen sich im UHV die  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) Rarctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion einstellen würde. Ebenfalls wird das Modell durch Experimente gestützt, in denen das Aufdampfen einer Aluminiumschicht auf die (1x1)-Fläche ebenfalls zu einer  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) Rarctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion führte [160, 199].

Die Rekonstruktion ist neben dem akademischen Aspekt auch von Interesse für die Epitaxie [195, 200]. Die Untersuchung der Oberflächenstruktur ist für das Verständnis der Prozesse auf der Oberfläche bei der Epitaxie somit essentiell. Zwei Strukturmodelle werden in der Literatur diskutiert. Das verbreitetste Modell beschreibt die Oberfläche als eine hexagonale Einheitszelle mit der Gitterkonstanten  $a = 26.5 \text{ \AA}$ , welche von  $Al(111)$ -Hexagons gebildet wird. In der Mitte der Einheitszelle sind die Oberflächenatome wohl-geordnet, während der Grad der Unordnung zum Rand der Einheitszelle hin zunimmt (siehe Abbildung 5.13) [174, 200].

Im Jahr 2009 wurde erstmals ein alternatives Strukturmodell in [179] vorgestellt. Indem AFM-Messungen mit DFT-Simulationen kombiniert wurden, wurde eine über die gesamte Einheitszelle hoch-geordnete Struktur abgeleitet. Die Einheitszelle wird dabei lediglich durch das Höhenprofil einer um  $(23 + 9)^\circ$  bezogen auf die unrekonstruierte Fläche gedrehten  $Al(111)$ -Schicht aufgespannt (siehe Abbildung 5.14). Die Einheitszelle besitzt eine genügend große Ausdehnung und ein langwelliges Höhenprofil, sodass die Saphir-(0001)-Fläche ausgewählt wurde, um eine Bestätigung für die an der (1120)-Fläche erstmalig beobachteten longitudinalen Kohärenz zu finden.

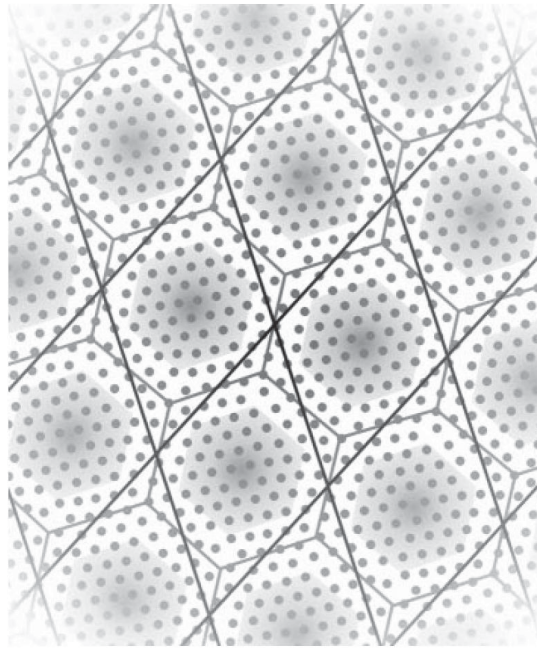


Abbildung 5.13: Strukturmodell der  $\sqrt{31}$ -Rekonstruktion aus [200]. Zu sehen ist eine hoch geordnete Struktur aus einer  $Al(111)$ -Schicht, deren Grad an Unordnung zum Rand hin zunimmt. Die Hexagons kennzeichnen die so aufgespannte Einheitszelle, die Rhomboeder deuten die in AFM-Messungen (Atomic Force Microscopy, Rasterkraft Mikroskopie) beobachteten Strukturen an. Für Details siehe [200].

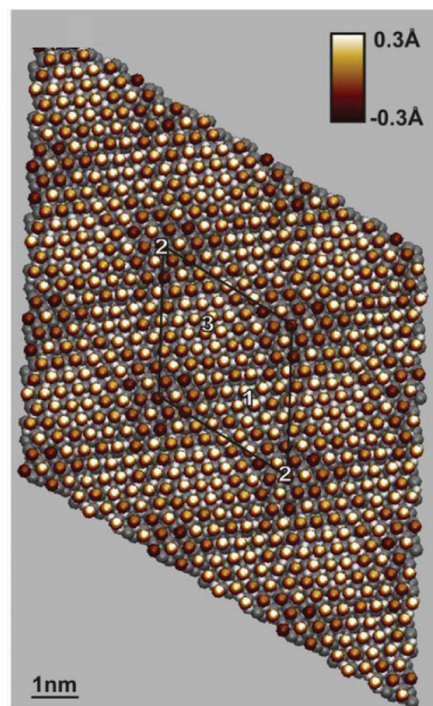


Abbildung 5.14: Strukturmodell der  $\sqrt{31}$ -Rekonstruktion aus [179]. Die Einheitszelle wird durch das Höhenprofil einer um  $(23 + 9)^\circ$  verdrehten  $Al(111)$ -Schicht gebildet. Die Zahlen 1 - 3 kennzeichnen verschiedene Unterstrukturen der Rekonstruktion. Für Details siehe [179]

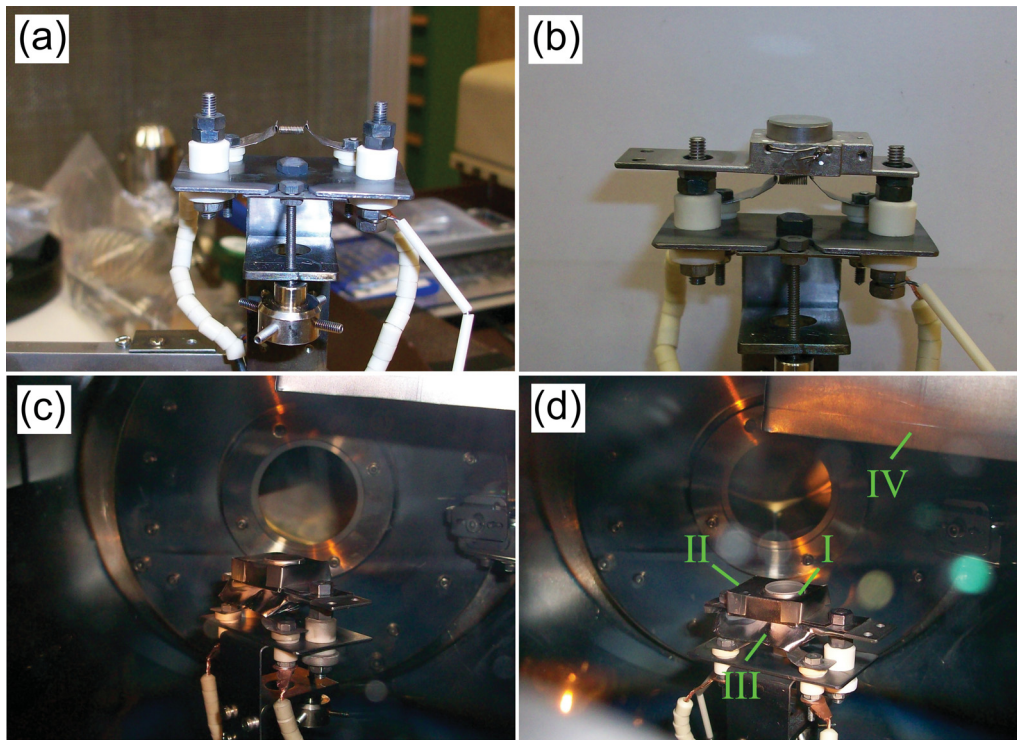


Abbildung 5.15: Fotos (a) des Heizfilamentes für die Probenheizung, ausgebaut aus einer Leuchtstoffröhre und über zwei Tantal-Folien gehalten, (b) des in den Probenhalter eingelassenen und über einen Tantaldraht gehalten und fixierten Saphir-(0001)-Kristalls, (c) des mit dem vollständigen Hitzeschild umgebenen Probenhalters mit eingesetztem Kristall, in die UHV-Kammer eingebaut, (d) des Probenhalters mit vollständigem Hitzeschild und eingesetztem Kristall aus einem anderen Blickwinkel, um die Komponenten besser darstellen zu können: *I* Tantal-Ring um den Kristall, *II* den Tantal-Halter umgebende Tantal-Bleche, *III* einem Tantal-Blech um das Filament, um die Wärmeabstrahlung vom Filament zu minimieren, um die Heizleistung zu maximieren und die Abstrahlung auf die Kammer zu minimieren sowie *IV* das Gehäuse aus miteinander verschweißten Tantal-Blechen, um die Wärmeabstrahlung vom Kristall zu minimieren.

### 5.3.2 Probenpräparation

Die Präparation der Kristalle außerhalb des UHVs fand analog zu der Präparation der Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Kristalle aus dem vorigen Abschnitt statt und wurde ebenfalls von *J. Sölle* durchgeführt.

Es konnte unter anderem in [205] gezeigt werden, dass das Sputtern des Targets keinen Erfolg bei der Präparation der Oberfläche brachte. Erst das Ausheilen des Kristalls zeigte eine Verbesserung der Streuerverteilungen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Kristalle darauf basierend nur durch das Ausheilen im UHV präpariert. Durch die zu erwartenden hohen Temperaturen beim Ausheilen, wurde für eine erhöhte Heizleistung das aus den Messungen an der (11 $\bar{2}$ 0)-Fläche bekannte Hitzeschild, welches sich bestens bewährte, verwendet, wie es in Abbildung 5.15 (c) und (d) gezeigt ist. Ferner sieht man (a) das verwendete Filament der Probenheizung,



ausgebaut aus einer Leuchtstoffröhre und (b) den in den Probenhalter eingesetzten Saphir-(0001)-Kristall, gehalten und fixiert durch einen Tantaldraht (dieser greift in eine vorher in den Kristall eingearbeitete Nut). Das Filament wird über zwei kleine Tantal-Folien gehalten. Zunächst werden die Folien nur an das Filament geklemmt, beim Anlegen eines Filamentstromes, wird das Filament dann durch die aus dem angelegten Strom resultierende Wärmeentwicklung an die Folien geschweißt und ist somit fest mit den Tantal-Folien verbunden.

Wie zuvor, wurde der Fortschritt der Präparation mittels der Aufnahme von Streuverteilungen überprüft. Eine Zusammenstellung für die Streuung von Wasserstoff-Projektilen mit Energien von  $E = 1000$  bzw.  $500$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.99^\circ$  entlang der  $[21\bar{1}0]$ -Richtung ist in Abbildung 5.16 gezeigt.

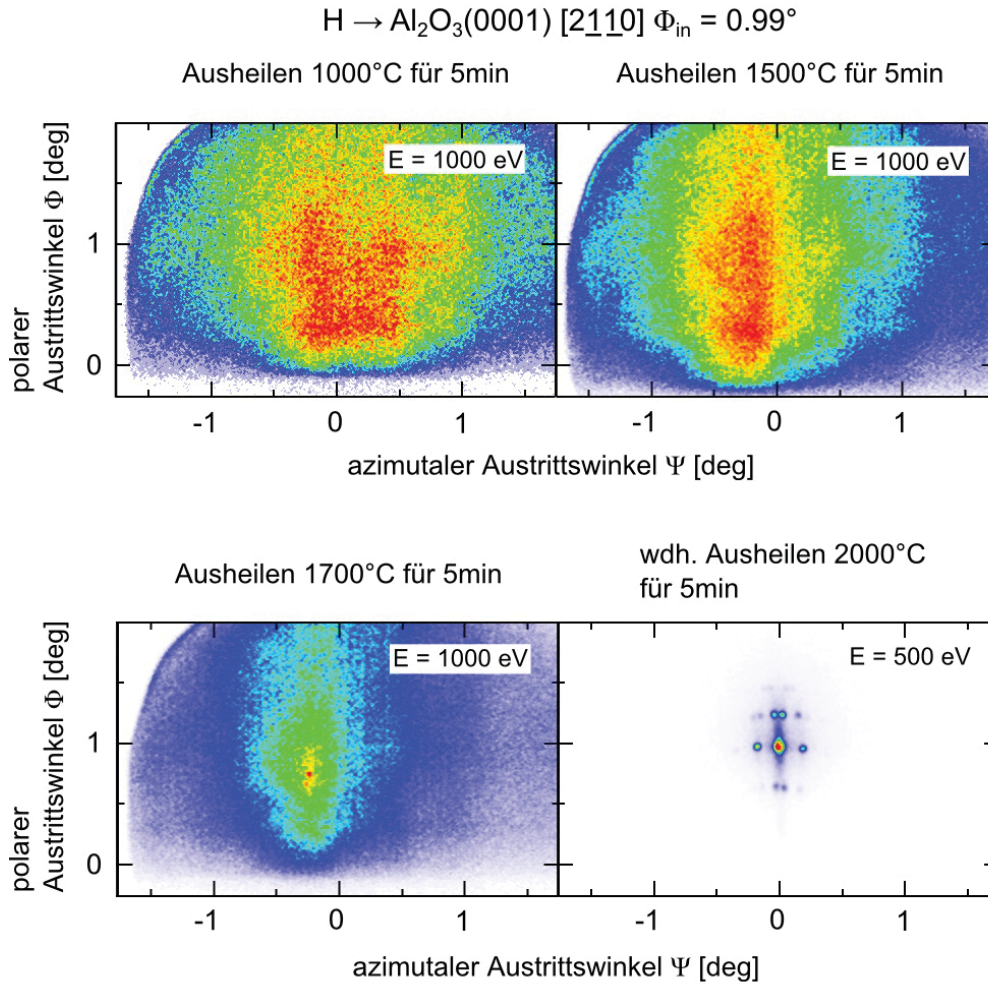


Abbildung 5.16: Streuverteilungen zur Überprüfung des Fortschrittes der Oberflächenpräparation für die Streuung von  $H$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.99^\circ$  mit einer Energie von  $1000$  bzw.  $500$  eV entlang der  $[21\bar{1}0]$ -Richtung. Gezeigt ist die Evolution von einer kompletten Ausleuchtung des MCPs bis hin zu einer hoch definierten Streuverteilung für das wiederholte Ausheilen bei  $T = 2000^\circ\text{C}$  für jeweils  $t = 5$  min.

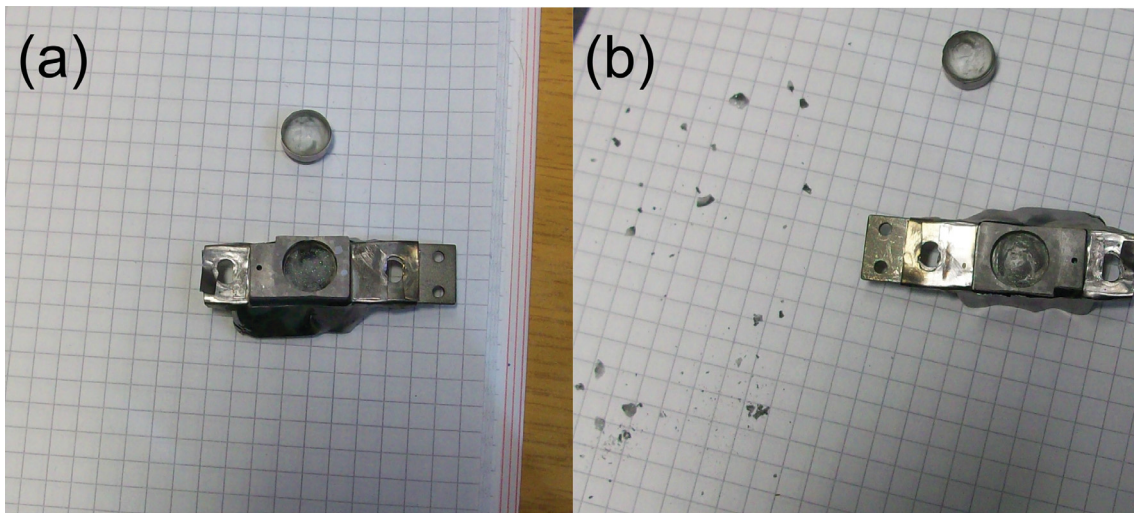


Abbildung 5.17: Der aus der UHV-Kammer ausgebaute Saphir-(0001)-Kristall mit dem Probenhalter. (a) Im Probenhalter sind Kristallreste zu erkennen, die durch das Anschmelzen des Kristalls durch die hohen Ausheiltemperaturen entstanden. (b) Zu sehen sind neben dem Probenhalter die aus ihm entfernten Kristallreste.

Als erfolgreiches „Rezept“ zur angemessenen Präparation der Oberfläche kristallisierte sich das Ausheilen bei  $T = 2000^\circ\text{C}$  für  $t = 5$  min heraus. Wie in Abbildung 5.16 zu sehen ist, zeigen sich im Beugungsspektrum hoch definierte Reflexe, die für eine longitudinale Kohärenz sprechen. Gleichzeitig fällt jedoch auf, dass das Muster der Streuverteilung entlang der  $[21\bar{1}0]$ -Richtung eine ungewöhnliche Anordnung der Beugungsreflexe aufweist. Die Ursache wird im folgenden Abschnitt diskutiert werden.

Die verwendeten Ausheiltemperaturen liegen nahe am Schmelzpunkt des Saphir-Kristalls (Schmelztemperatur:  $T = 2050^\circ\text{C}$  [206]). Die Temperaturmessung findet jedoch an der Oberfläche des Kristalls statt. An der Unterseite des Kristalls ist die Temperatur, trotz Hitzeschildes, wesentlich höher. Das hatte zur Folge, dass die Kristalle am Probenhalter anschmolzen. In Abbildung 5.17 (a) ist der Probenhalter mit entferntem Kristall gezeigt. Man erkennt deutlich die Kristallrückstände in der Halterung. Abbildung 5.17 (b) zeigt den von den Kristallresten befreiten Probenhalter sowie die Menge an entferntem Kristall aus der Halterung. Die Kristalloberfläche war jedoch bis zum Ausbau des Kristalls optisch glatt und spiegelnd. Das bedeutet, dass nur die Unterseite aufgrund der höheren Temperaturen Schäden erlitten hat und ein Einfluss auf die Oberfläche ausgeschlossen werden kann.

### 5.3.3 Ergebnisse und Diskussion

Wie im Abschnitt „Probenpräparation“ in Abbildung 5.16 bereits zu sehen war, zeigen sich bei der Aufnahme von Streubildern entlang der beiden Haupttrichtungen ungewöhnliche Streuverteilungen. Für verschiedene Projektile und Energien sind diese für die beiden Richtungen  $[21\bar{1}0]$  und  $[10\bar{1}0]$  in Abbildung 5.18 gezeigt. Insbesondere fällt die geringe Ausdehnung der Reflexe auf. Der spekulär gestreute Strahl hatte in den Messungen teilweise eine Ausdehnung von einem Channel des MCP. Daraus kann man ableiten, dass die Oberfläche atomar glatt ist. Die Breite der Beugungsreflexe wird somit nur von der Breite des Projektilestrahls bestimmt und



erfordert hohe Achtsamkeit bei dessen Herstellung. Auffällig ist das Auftreten weiterer Beugungsreflexe außerhalb des Laue-Kreises nullter Ordnung.

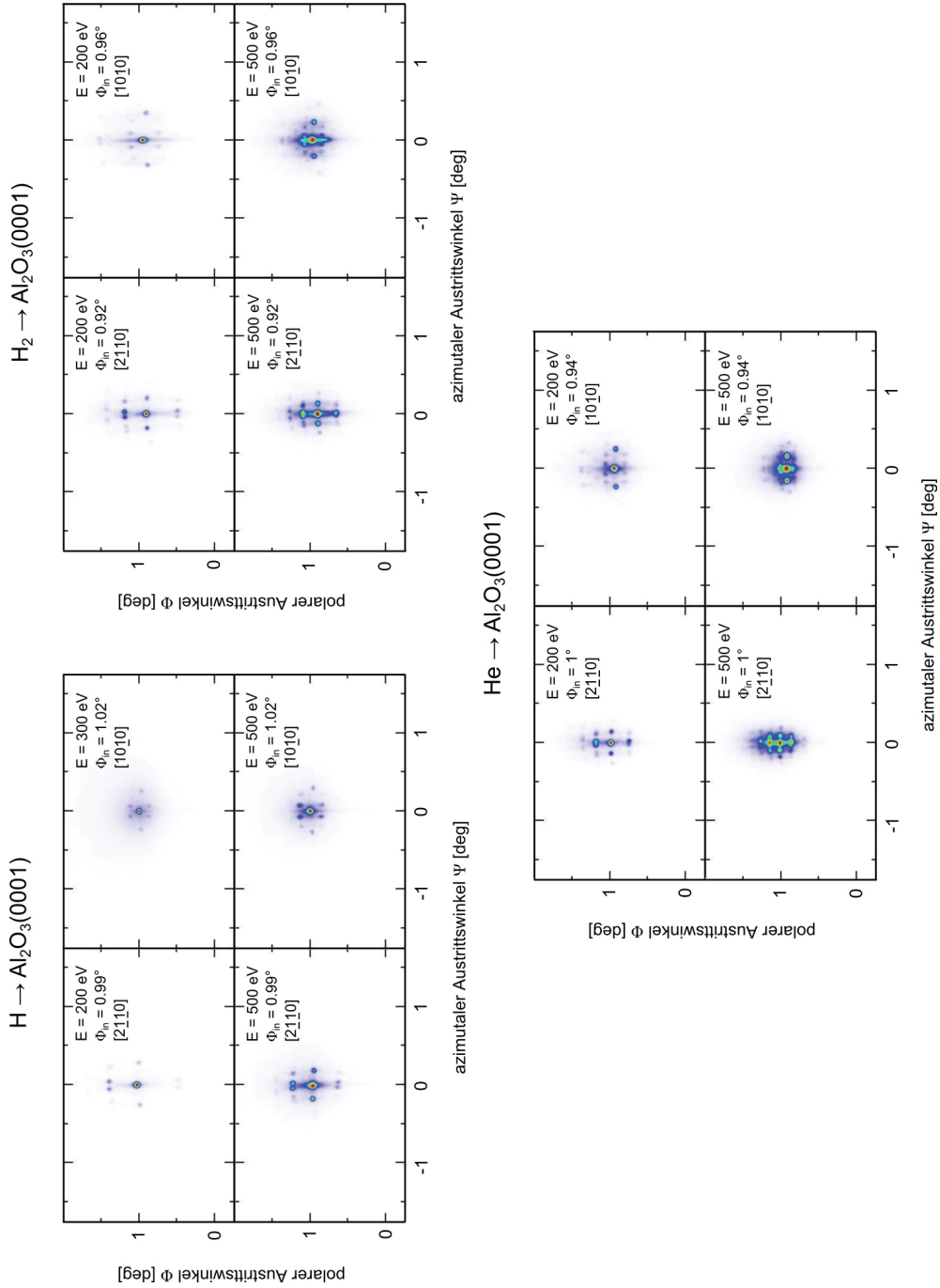


Abbildung 5.18: Zusammenstellung von Beispielmessungen an der  $\alpha-Al_2O_3(0001)$ -Fläche entlang der Richtungen  $[21\bar{1}0]$  und  $[10\bar{1}0]$  für die Streuung mit  $He$ -,  $H$ - und  $H_2$ -Projektilen für verschiedene Energien und Einfallswinkel.

Eine erste Vermutung zum Ursprung der zusätzlichen Beugungsreflexe war das Vorhandensein von Facetten, wie sie für diese Fläche in der Literatur zahlreich untersucht wurden [149–154], entstanden entweder durch die Präparation im UHV oder durch die Präparation vor dem Einbau des Kristalls. Facetten würden in diesem Fall bedeuten, dass an zueinander verkippten, makroskopischen Domänen gestreut wird, sodass die Projektile unterschiedliche polare Austrittswinkel erhalten. Die Ebenheit der Einzeldomänen wäre dadurch nicht beeinträchtigt, wodurch diese Erklärung mit der geringen Breite der Beugungsreflexe im Einklag stünde. Um diese Vermutung zu überprüfen, wurden Streuverteilungen mit  $H$ -Projektilen entlang der  $[2\bar{1}10]$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.99^\circ$  und einer Energie von  $E_0 = 300$  eV aufgenommen. Der Kristall wurde anschließend um  $\Gamma = 1.5^\circ$  aus der  $[2\bar{1}10]$ -Richtung verdreht und es wurden erneut Streuverteilungen aufgenommen. Beide Streuverteilungen sind in Abbildung 5.19 gezeigt. Wenn es sich um eine facettierte Oberfläche handeln würde, müssten sich der Laue-Kreis nullter Ordnung und die zusätzlichen Laue-Kreise im nahezu selben Maß verdrehen. Dies ist, wie in Abbildung 5.19 gezeigt, offenbar nicht der Fall. Somit können Facetten als Ursache für die Art der Streuverteilungen ausgeschlossen werden.

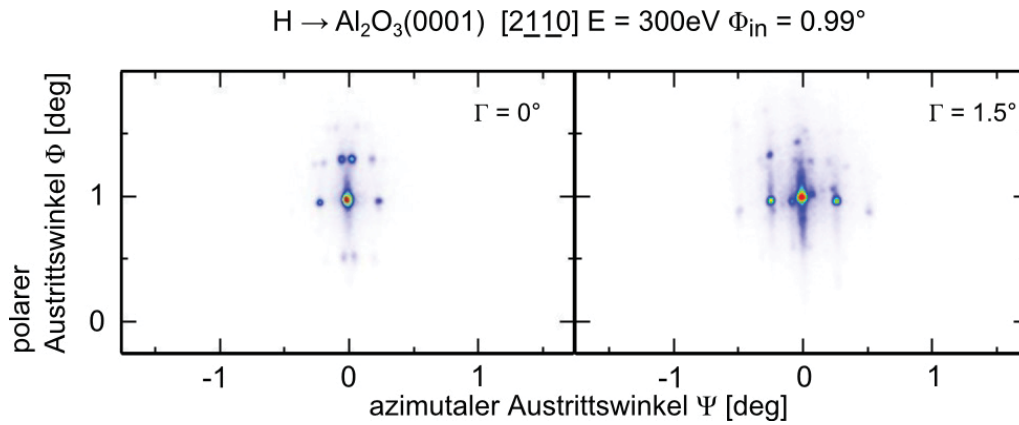
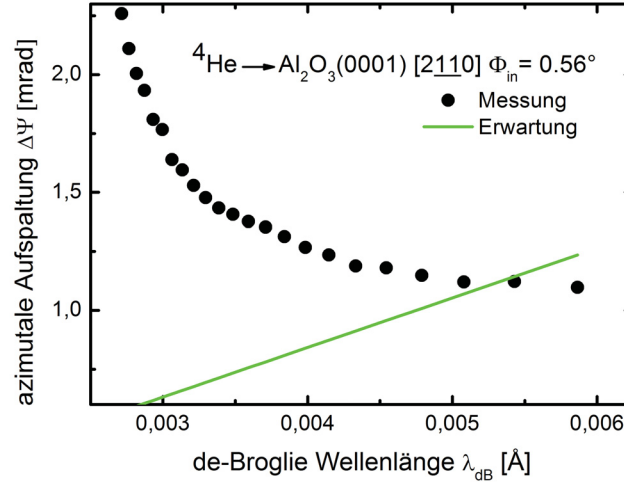


Abbildung 5.19: Beugungsbilder für die Streuung von  $H$ -Projektilen an der  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ -Fläche entlang der  $[2\bar{1}10]$ -Richtung mit einer Energie von  $E_0 = 300$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.99^\circ$  mit den Verdrehungen  $\Gamma = 0^\circ$  (links) und  $\Gamma = 1.5^\circ$  (rechts) aus der  $[2\bar{1}10]$ -Richtung hinaus.

Für eine weitere Aufklärung wurden die Symmetriebreite aus den Beugungsspektren für die Streuung von  $^4\text{He}$ -Projektilen entlang der  $[2\bar{1}10]$ -Richtung ausgewertet. Die Messungen fanden unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.56^\circ$  statt. Eine Auswertung der azimuthalen Abstände der Beugungsreflexe ist in Abbildung 5.20 für verschiedene Energien und somit de-Broglie Wellenlängen dargestellt. Neben den ausgewerteten Kanalbreiten, ist auch die zu erwartende lineare Abhängigkeit des azimuthalen Abstandes der Beugungsreflexe von der de-Broglie Wellenlänge in Abbildung 5.20 eingezeichnet. Ein linearer Zusammenhang ist nicht gegeben. Man erkennt ein völlig unerwartetes Verhalten der Messungen.



Abbildungung 5.20: Auswertung der azimutalen Abstände der Beugungsreflexe für die Streuung mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.56^\circ$  entlang der  $[2110]$ -Richtung in Abhängigkeit zur de-Broglie Wellenlänge.

In zum Beispiel [203] wird die Verdrehung der Rekonstruktion der  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ -Fläche mit  $R \pm 9^\circ$  angegeben. In Abbildung 5.18 und 5.19 ist eine leichte „Schattenbildung“ zu erkennen, die zunächst als Artefakte der Messung gewertet wurden. Bei genauerer Betrachtung stellt man jedoch fest, dass eine rechts-links Symmetrie herrscht. Ein erster Deutungsansatz war es dann, dass es sich um Beugungsreflexe von zwei verschiedenen Verdrehungen, zum einen  $\Gamma = +9^\circ$ , zum anderen  $\Gamma = -9^\circ$  handelt. Eine entsprechende Analyse ist in Abbildung 5.21 gezeigt.

Die visuelle Auswertung zeigt zunächst, dass die „Schatten“ in den Spektren entlang der Laue-Kreise für eine Verdrehung von sowohl  $\Gamma = +9^\circ$ , als auch  $\Gamma = -9^\circ$  verlaufen. Als nächster Schritt zur Bestätigung der Vermutung, wurden Berechnungen des sich ergebenden Streubildes für beide Winkel  $\Gamma$  mit den Formeln (5.3) und (5.4) durchgeführt. Sie sind in Abbildung 5.22 dargestellt.

Man findet eine hervorragende optische Übereinstimmung zwischen der Messung und den Berechnungen. Die Streubilder können so gedeutet werden, dass es verschiedene Domänen der Oberfläche gibt, bei der die einen eine Rekonstruktion mit einer  $9^\circ$ -, die anderen eine  $-9^\circ$ -Verdrehung aufweisen. Die Streuung entlang der Hauptrichtung der unrekonstruierten Fläche findet also genau in der Mitte zwischen beiden Rekonstruktionen statt und erzeugt so die gezeigten Streubilder.

Für eine effektive Auswertung wurde die Auswerteprozedur für die Auswertung der Beugungsbilder der Saphir-(1120)-Fläche modifiziert, sodass gleichzeitig Reflexe für die  $+9^\circ$ - wie für die  $-9^\circ$ -Verdrehung berechnet werden können. Die Reflexe werden überlagert und die Intensitäten der zusammenfallenden Beugungsreflexe miteinander addiert. Für die Regressionen wurde so verfahren, dass der Einfachheit halber nur Reflexe einer der beiden Verdrehungen berücksichtigt wurden. Die Reflexe dienen dann als Start-Parameter für die Regression des Teils des Messspektrums. Parameter für die Regressionen waren die Länge des Gittervektors  $|\vec{a}| = 4.749 \text{ Å}$ , der Vergrößerungsfaktor der Überstruktur  $F = \sqrt{31}$  sowie der Verdrehungswinkel  $\gamma = \frac{\sqrt{3}}{11}$  [174]. Diese können für die Regression jeweils fest gesetzt werden, sodass es möglich war

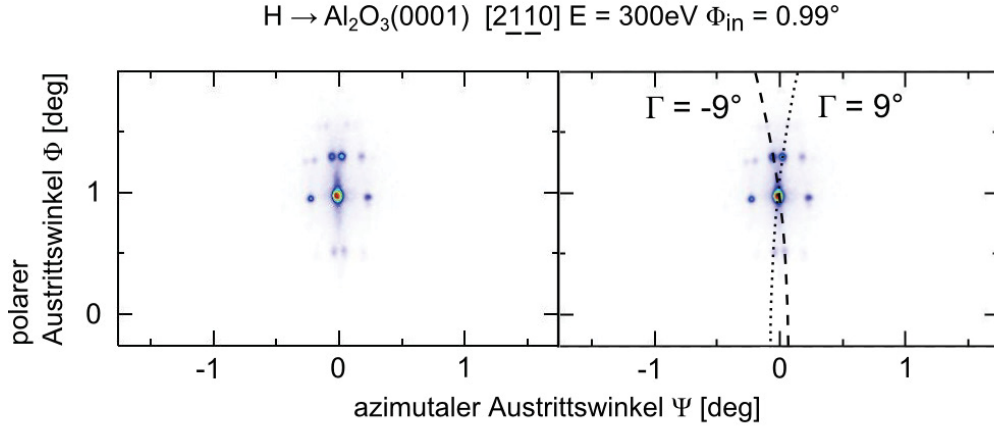


Abbildung 5.21: Links: Messung einer Streuverteilung an der Saphir-(0001)-Fläche mit  $H$ -Projektilen mit einer Energie von  $E = 300$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.99^\circ$  entlang der  $[21\bar{1}0]$ -Richtung. Rechts: selbe Messung. Eingezeichnet sind die erwarteten Verläufe der Laue-Kreise für Verdrehungen  $\Gamma = 9^\circ$  (Punkte) und  $-9^\circ$  (Striche).

verschiedene Parameter und Parameter-Kombinationen anzupassen. Ungeeignete Kombinationen, wie die Länge des Gittervektors und  $F$  gleichzeitig anpassen zu lassen, werden von vornherein im Programm unterdrückt. Üblicherweise wurden  $F$  und  $\gamma$  zur Anpassung zugelassen. Aus den gewonnenen Parametern wird dann das gesamte Spektrum mit beiden Verdrehungen berechnet.

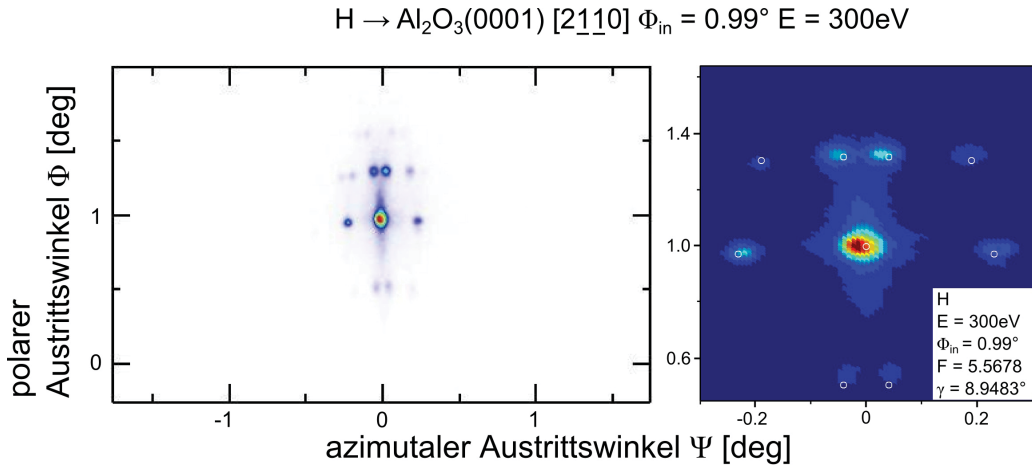


Abbildung 5.22: Links: Beugungsmessung an der Saphir-(0001)-Fläche entlang der  $[21\bar{1}0]$ -Richtung mit  $H$ -Projektilen mit einer Energie von  $E = 300$  eV unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.99^\circ$ . Rechts: Vergrößerung der farbcodierten Streuverteilung mit den eingezeichneten theoretisch zu erwartenden Positionen der Beugungsreflexe (weiße Kreise).

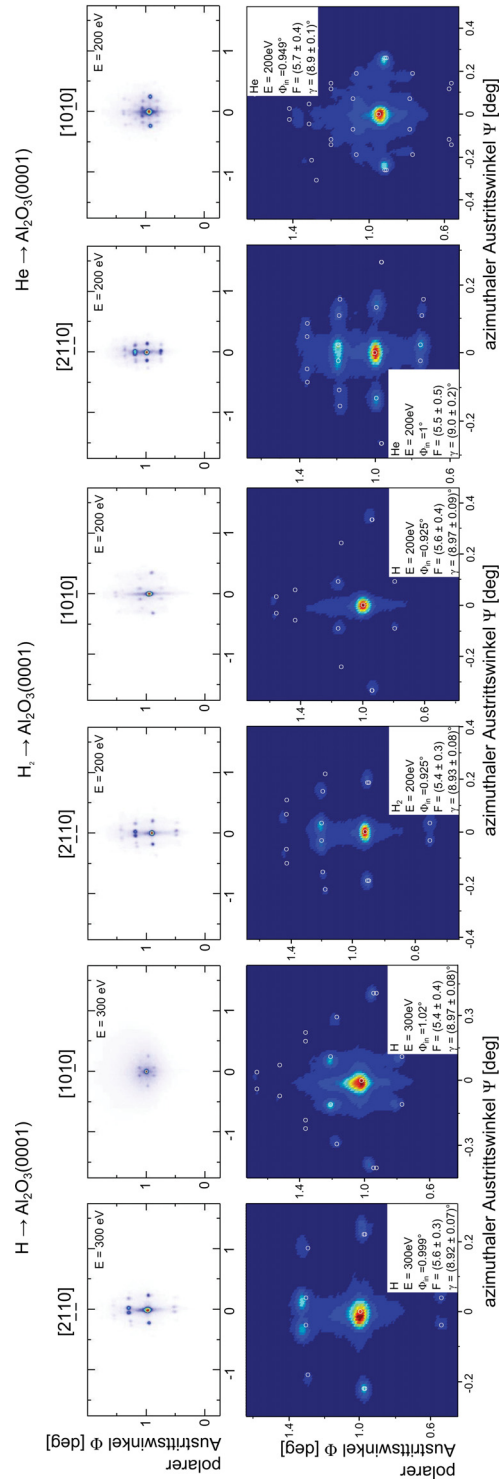


Abbildung 5.23: Beispiele für das Ergebnis der Regressionen für die Anpassung der Parameter Vergrößerungsfaktor der Überstruktur  $F$  und Verdrehungswinkel  $\gamma$ , jeweils entlang der beiden Richtungen  $[2110]$  und  $[1010]$  für  $H$ -,  $H_2$ - und  $He$ -Projektile. In der oberen Reihe sind die Messungen gezeigt. Die untere Reihe zeigt jeweils eine farbcodierte Vergrößerung der Messspektren mit den dazugehörigen Reflexpositionen, welche mittels Regressionen angepasst wurden (weiße Kreise).

Beispiele für erfolgreiche Regressionen sind in Abbildung 5.23 für die drei verschiedenen Projektile  $H$ ,  $H_2$  und  ${}^4\text{He}$  bei der Streuung entlang der Richtungen  $[2110]$  und  $[1010]$  gezeigt. Trotz geringer Unsicherheiten der Werte  $F$  und  $\gamma$  erkennt man leichte Abweichungen von den Messspektren. Das belegt die Empfindlichkeit des komplexen Beugungsbildes auf kleinste Veränderungen der Parameter. Im realen Experiment würde man kleine Verdrehungen aufgrund der Breite der Beugungslinie unter Umständen nicht bemerken. Eine perfekte Ausrichtung des Kristalls wurde so deutlich erschwert.

Für die Gesamtheit der Messspektren wurden auf die oben beschriebene Weise Regressionen durchgeführt. Die so erhaltenen Parameter sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst.

	$H$	$H_2$	$He$	Literatur
$F$	$(5.55 \pm 0.08) \text{ \AA}$	$(5.60 \pm 0.09) \text{ \AA}$	$(5.7 \pm 0.2) \text{ \AA}$	5.5678
$\gamma$	$(8.94 \pm 0.03)^\circ$	$(8.94 \pm 0.03)^\circ$	$(8.95 \pm 0.05)^\circ$	$8.9483^\circ$

Tabelle 5.2: Auswertung des Vergrößerungsfaktors  $F$  und des Verdrehungswinkels  $\gamma$  aus der Regression für die Messungen mit  $H$ -,  $H_2$ - und  $He$ -Projektile an der  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31})R \pm \arctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion der Saphir-(0001)-Fläche. Referenzwerte aus [174].

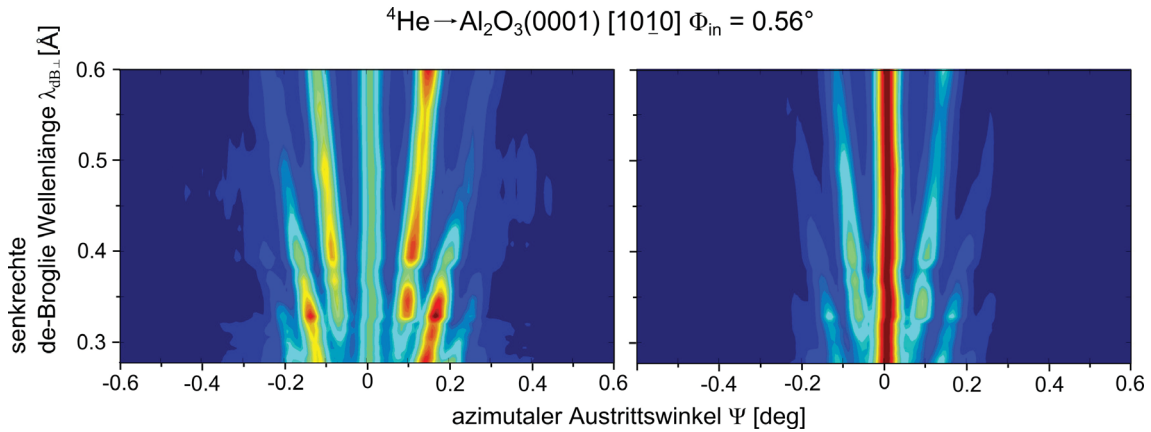


Abbildung 5.24: Vergleich der Beugungskarten für die Streuung von  ${}^4\text{He}$ -Projektile entlang der  $[1010]$ -Richtung einer der beiden Domänen der  $\sqrt{31}$ -Rekonstruktion unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.56^\circ$  mit (a) die spekulare Intensität wurde abgeschwächt, (b) unbearbeitete Messungen.

In den bisherigen Messungen konnte noch keine Aussage über die Struktur der Einheitszelle getroffen werden. Um eine aufwendige dreidimensionale Simulation zu vermeiden, wurden Beugungskarten entlang der  $[1010]$ -Richtung von einer der beiden um  $9^\circ$  verdrehten Domänen mit  ${}^4\text{He}$ -Projektile unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.56^\circ$  aufgenommen. Diese Messungen können effektiv als zweidimensional behandelt werden. Die bisherigen Messungen zeigten eindeutig, dass die Oberfläche eine hoch definierte und atomar glatte Struktur aufweisen muss. Die Messungen



sind in Abbildung 5.24 (b) gezeigt. Wie in den bereits gezeigten Messungen zu sehen war, sind die Intensitäten der Messspektren deutlich von der Intensität des spekulär reflektierten Strahls dominiert. Das führt dazu, dass Details in den Spektren durch die hohe Intensität des spekulär reflektierten Strahls „untergehen“. Um dies zu vermeiden, ist in Abbildung 5.24 (a) die selbe Beugungskarte mit abgeschwächter nullter Beugungsordnung gezeigt. Sie soll als Vergleich für die weiteren Simulationen dienen.

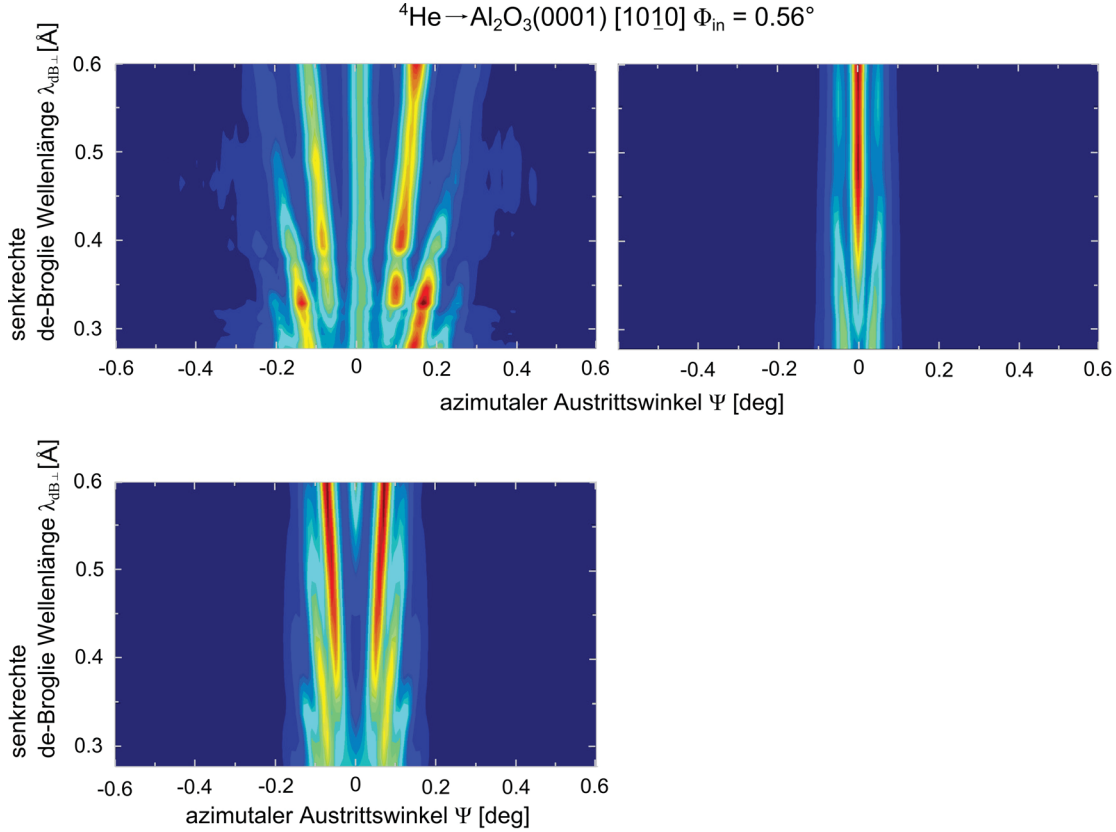


Abbildung 5.25: Vergleich der Links: gemessenen Beugungskarte mit abgeschwächter spekularer Intensität mit Mitte: der simulierten Beugungskarte für ein OCB-Potential, bzw. Rechts: für ein HF-Potential. Es wurden in der Messung Streuverteilungen entlang der  $[10\bar{1}0]$ -Richtung einer der beiden um  $9^\circ$  verdrehten Domänen mit  ${}^4\text{He}$ -Projektilen unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{\text{in}} = 0.56^\circ$  aufgenommen.

In Abbildung 5.25 sind einerseits die Messung mit abgeschwächter spekularer Intensität, zum anderen Simulationen auf Basis der Struktur aus [179] für ein OCB- sowie für das HF-Potential gezeigt. Das Strukturmodell kann das gemessene Beugungsbild nicht erzeugen. Die Simulation mit einem OCB-Potential zeigt im Gegensatz zur Messung eine Modulation der nullten Beugungsordnung. Weiterhin sieht man in den Simulationen nur Intensitäten bis zur ersten Beugungsordnung. In der experimentellen Beugungskarte sind Intensitätsverläufe für drei Beugungsordnungen zu erkennen. Diese werden sehr akkurat von den Simulationen mit einem HF-Potential

wiedergegeben. Allerdings zeigen diese Simulationen eine starke Modulation der nullten Beugungsordnung in Abhängigkeit zu der senkrechten de-Broglie Wellenlänge. Das Strukturmodell nach [179] ist also nicht in der Lage, die Messungen korrekt zu beschreiben. Eine Variation des Strukturmodells war aufgrund der Komplexität der Einheitszelle nicht möglich.

Um die Struktur auf ihre Stabilität bei einer veränderten Atmosphäre zu untersuchen, wurde die UHV-Kammer belüftet und anschließend wieder abgepumpt, ohne am Messaufbau sonstige Veränderungen vorzunehmen. Ebenfalls wurde der Kristall für ergänzende Messungen nach 16-monatiger Lagerung an Luft erneut in die UHV-Kammer eingebaut. Es zeigte sich, dass nach dem Ausheilen bei  $T < 1000^\circ\text{C}$  jeweils die charakteristischen Beugungsmuster zu erkennen waren (nicht gezeigt). Die Rekonstruktion zeigt demnach auch an Luft eine hohe Stabilität. Experimente zur Reversibilität der Rekonstruktion wurden nicht durchgeführt.

Es war möglich anhand der  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ -Fläche mit der charakteristischen  $(\sqrt{31}\times\sqrt{31})\text{Rarctan}\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion an einem weiteren System die longitudinale Kohärenz für die Streuung von  $H$ -,  $H_2$ - sowie  $He$ -Projektilen zu zeigen. Die Auswertung der Messungen lieferte exzellente Übereinstimmungen mit den Literaturwerten für den Vergrößerungsfaktor sowie für den Verdrehungswinkel  $\gamma$ . Lediglich ein Strukturmodell konnte nicht erstellt werden. Simulationen entsprechender Beugungskarten auf Basis des Strukturmodells aus [179] zeigten große Diskrepanzen zu den gemessenen Beugungskarten. Aufgrund der Komplexität der Einheitszelle, war eine Anpassung der Struktur bisher nicht möglich. Gleichzeitig spricht die geringe Breite der Beugungsreflexe jedoch gegen eine Oberfläche mit Defektstrukturen, wie sie in zum Beispiel [200] postuliert wird. Eine weitere Aufklärung war im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich.

## 5.4 Zusammenfassung

Die FAD-Messungen von *Busch et al.* an der  $(12\times 4)$ -Rekonstruktion der  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche [41, 155] konnten im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich bestätigt und um Messungen mit verschiedenen Projektilen ergänzt werden. Es wurde gezeigt, dass bereits für Messungen mit  $He$ -Projektilen die Beugungsreflexe aufgrund des geringen Abstandes zueinander nicht mehr voneinander zu trennen sind. Durch ein für das Aluminiumoxid-System geschriebenes Auswerteprogramm konnte die Genauigkeit der bestimmten Gitterparameter über Messungen mit leichteren Projektilen im Vergleich zu [41, 155] weiter verbessert werden. Ferner konnte für die  $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche eine von *Garibaldi et al.* [56] vorgestellte Beschreibung der Intensitäten der Beugungsreflexe für die Geometrie der streifenden Streuung von Atomen abgewandelt und erfolgreich zur Wiedergabe der Messungen angewendet werden. Das so entwickelte Modell der verdrehungswinkelabhängigen Korrugation  $\varsigma(\Gamma)$  steht in Übereinstimmung mit dem Experiment.

Als Bestätigung des Auftretens der longitudinalen Kohärenz, wurden Messungen an der  $(\sqrt{31}\times\sqrt{31})\text{Rarctan}\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion der Saphir-(0001)-Fläche durchgeführt. Es konnten neuartige Beugungsbilder aufgenommen und ausgewertet werden. Die ungewöhnliche Anordnung der Beugungsreflexe konnte mit der Streuung entlang der Hauptrichtungen der unrekonstruierten Fläche, also genau zwischen Domänen mit den beiden möglichen Verdrehungen  $\approx \pm 9^\circ$ , erklärt werden. Wie schon bei der

Saphir-(11 $\bar{2}$ 0)-Fläche, konnte durch die Präparation eine atomar glatte Fläche erzeugt werden, sodass die Ausdehnung der Beugungsreflexe nur von der Präparation des Messstrahls abhing. Die so ausgewerteten Messungen lieferten genaue Werte für die Gitterparameter der Rekonstruktion, welche im Einklang mit der Literatur stehen. Aufgrund der Komplexität der Einheitszelle, war es dennoch nicht möglich, aus den Beugungskarten für die Streuung entlang der  $[10\bar{1}0]$ -Richtung der Rekonstruktion ein Strukturmodell für die Oberfläche abzuleiten. Lediglich auf eine Diskrepanz des Strukturmodells nach *Lauritsen et al.* [179] konnte geschlossen werden. Die Rekonstruktion erwies sich selbst bei mehrere Monate andauernder Lagerung an Luft als stabil.

# 6 Die streifende Streuung an einer Ionenkristalloberfläche mit Wasserstoffmolekülen

In [40, 207, 208] wurden Messungen dieser Arbeitsgruppe an einem  $KCl(001)$ -Kristall präsentiert. Nicht veröffentlichte Beugungskarten für Messungen entlang der  $[100]$  und  $[110]$ -Richtung (siehe Abbildung 6.1 und 6.2) zeigen für einfache Projektile, wie  $D$ ,  $^3He$  und  $^4He$  in beide Richtungen ausgeprägte Intensitätsmodulationen über den gesamten vermessenen Bereich der senkrecht-de-Broglie Wellenlänge. Das unerwartete Ergebnis der Messungen mit Molekülen war, dass die Modulation der Intensitäten über die senkrecht-de-Broglie Wellenlänge entlang der  $[100]$ -Richtung erhalten blieb, jedoch für die Streuung entlang der  $[110]$ -Richtung vollständig verschwand.

Das Kapitel „Theoretische Grundlagen“ behandelte ausschließlich die Wechselwirkung von Atomen mit Kristalloberflächen bei der streifenden Streuung. Bisher war es nur möglich anhand der Beugungsmessungen mit Molekülen Symmetriebreiten zu bestimmen. Entsprechende Simulationen der Streuverteilungen waren bisher nicht realisiert. In diesem Kapitel soll die Theorie zur streifenden Streuung nun auf Moleküle erweitert, und ein entsprechendes Wechselwirkungspotential abgeleitet und für die Messungen mit  $H_2$ -Projektilen an der  $KCl(001)$ -Fläche getestet werden.

## 6.1 Das Wechselwirkungspotential

Grundlage zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen einem  $H_2$ -Molekül und einer  $KCl(001)$ -Fläche soll die Arbeit von *G.-J. Kroes* und *R. C. Mowrey* [209] sein, in der ein Wechselwirkungspotential für Wasserstoffmoleküle  $H_2$  an der  $LiF(001)$ -Oberfläche abgeleitet wurde. Der Startpunkt ist das Wechselwirkungspotential  $V_{Mol}$  [209]:

$$V_{Mol} = V_{Rep} + V_6 + V_8 + V_3 + V_{ELS} + V_{Ind} \quad (6.1)$$

Die Potentialterme werden einzeln diskutiert.

### 6.1.1 Repulsives Paarpotential $V_{Rep}$

$V_{Rep}$  stellt einen Ausdruck für das repulsive Paar-Potential zwischen dem Molekül und einem Oberflächenatom/-ion aufgrund der Abstoßung der Elektronenhüllen dar und wird mit [210–216]

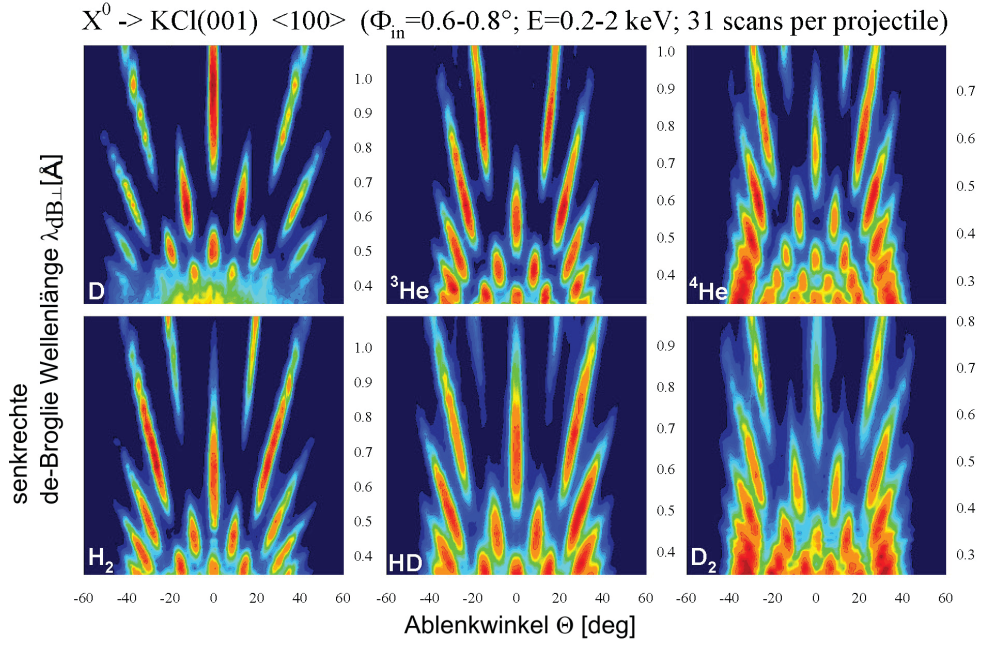


Abbildung 6.1: Beugungskarten für die Streuung mit verschiedenen Projektilen  $D$ ,  ${}^3He$ ,  ${}^4He$ ,  $H_2$ ,  $HD$  und  $D_2$  an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der  $[100]$ -Richtung für eine Energiespanne von  $E = 0.2-2.0$  keV und eine Spanne von Einfallswinkeln von  $\Phi_{in} = 0.6-0.8^\circ$ . (Messungen und Abbildungen von *M. Busch*)

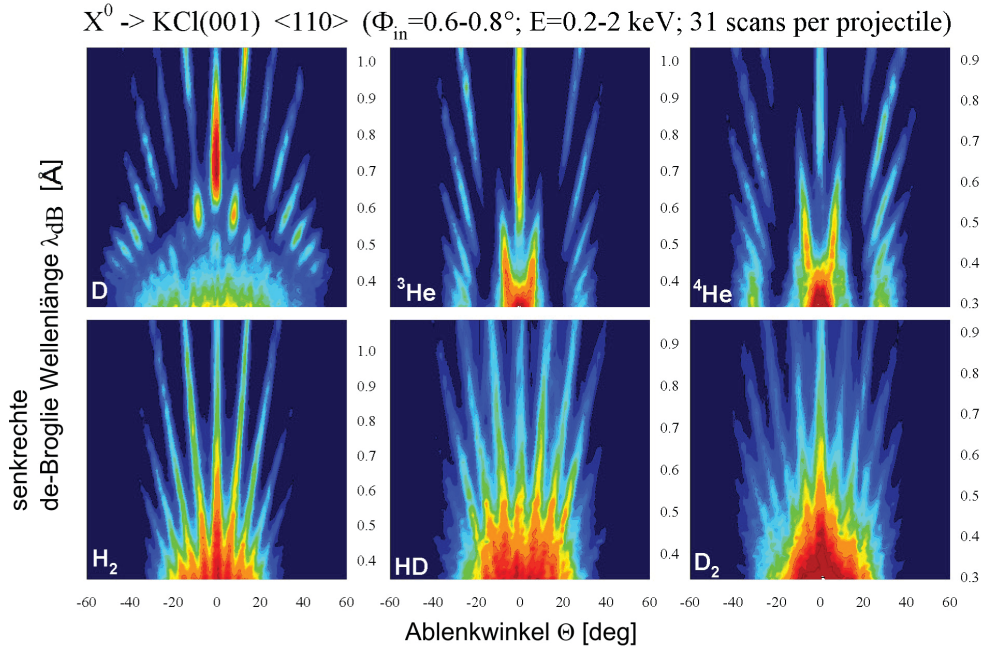


Abbildung 6.2: Beugungskarten für die Streuung mit verschiedenen Projektilen  $D$ ,  ${}^3He$ ,  ${}^4He$ ,  $H_2$ ,  $HD$  und  $D_2$  an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der  $[110]$ -Richtung für eine Energiespanne von  $E = 0.2-2.0$  keV und eine Spanne von Einfallswinkeln von  $\Phi_{in} = 0.6-0.8^\circ$ . (Messungen und Abbildungen von *M. Busch*)



$$V_{Rep}(\vec{r}) = a(\gamma) \cdot \exp(-b(\gamma) \cdot r) \quad (6.2)$$

modelliert. Hierbei ist  $r = |\vec{r}|$  der Betrag des Abstandsvektors zwischen dem Molekülschwerpunkt und einem Oberflächenion, und  $\gamma$  die Ausrichtung der Molekülachse relativ zur Oberfläche. Für die Potentialparameter  $a$  und  $b$  wurde analog zu [209] eine Entwicklung nach Legendre-Polynomen  $P_m(\cos(\gamma))$  gewählt

$$a(\gamma) = a_0 \cdot P_0(\cos(\gamma)) + a_2 \cdot P_2(\cos(\gamma)) + a_4 \cdot P_4(\cos(\gamma)) \quad (6.3)$$

$$b(\gamma) = b_0 \cdot P_0(\cos(\gamma)) + b_2 \cdot P_2(\cos(\gamma)) + b_4 \cdot P_4(\cos(\gamma)) \quad (6.4)$$

Die Parameter  $a_{0,2,4}$  und  $b_{0,2,4}$  wurden über eine einfache Abschätzung bestimmt. Die Wechselwirkung soll sich wie die Wechselwirkung zweier einzelner Wasserstoffatome, mit einem festen Abstand zueinander, mit einem Oberflächenion äußern. Das Wechselwirkungspotential wird dafür mit der Abschirmfunktion des OCB-Potentials, welches ebenfalls ein rein repulsives Potential liefert, modelliert. An das so entstehende Potential werden Funktionen der Form

$$F(\vec{r}) = a \cdot \exp(-b \cdot r)$$

angepasst, sodass man für verschiedene Ausrichtungen  $\gamma$  des Moleküls bezogen auf die Oberfläche Parameter  $a(\gamma)$  bzw.  $b(\gamma)$  erhält, die dann nach (6.3) bzw. (6.4) nach Legendre-Polynomen zu entwickeln sind. Man erhält so für den repulsiven Anteil des Wechselwirkungspotentials die Parameter aus Tabelle 6.1.

	$K^+$	$Cl^-$
$a_0$	14.5228	12.9692
$a_2$	7.4040	6.8151
$a_4$	9.3181	8.9339
$b_0$	1.4002	1.4070
$b_2$	0.1646	0.1750
$b_4$	0.3556	0.3894

Tabelle 6.1: Ermittelte Potential-Parameter für die Gleichungen (6.3) und (6.4) aus dem Potential (6.2). Die Parameter  $a_{0,2,4}$  sind in eV, die Parameter  $b_{0,2,4}$  in a.u.<sup>-1</sup> gegeben.

Aufgrund der Streugeometrie ist das Potential entlang der Streurichtung zu mitteln, analog zum Wechselwirkungspotential der atomaren Projektile im Abschnitt „Theoretische Grundlagen - Wechselwirkungspotentiale“. Wenn die Streurichtung parallel zu der  $x$ -Achse liegt, erhält man das Integral

$$\bar{V}_{Rep}(\rho) = \frac{a(\gamma)}{d} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-b(\gamma) \rho \sqrt{1 + \left(\frac{x}{\rho}\right)^2}\right) dx$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{a(\gamma)}{d} \rho \int_{-\infty}^{\infty} \cosh(u) \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \\
 &= 2 \frac{a(\gamma)}{d} \rho K_1(b(\gamma) \rho)
 \end{aligned} \tag{6.5}$$

mit der Symmetriebreite  $d$  und dem Abstand  $\rho = \sqrt{y^2 + z^2}$  zwischen Molekülschwerpunkt und den Oberflächenionen.  $K_1(b(\gamma) \rho)$  stellt die modifizierte Besselfunktion zweiter Art in der ersten Ordnung dar.

### 6.1.2 Attraktive Paar-Potentiale $V_6$ und $V_8$

Die Potentialterme  $V_6$  und  $V_8$  stellen die attraktiven Paar-Potentiale zwischen dem im Molekül induzierten Dipol- bzw. Quadrupolmoment und den in der Oberfläche durch das Molekül induzierten Dipolen dar. Beide Terme ergeben sich aus der störungstheoretischen Behandlung des Wechselwirkungspotentials zu  $V(\vec{r}) = -\frac{C_6}{r^6} - \frac{C_8}{r^8} - \frac{C_{10}}{r^{10}} \dots$  mit dem Abstand  $\vec{r}$  zwischen Projektil und Oberflächenion bzw. -atom [217]. Die Potentiale haben die Form [210, 216, 217]

$$V_6(\vec{r}, \gamma) = -C_6(\gamma) \frac{1}{r^6} \cdot f_{d6}(r, \gamma) \tag{6.6}$$

$$V_8(\vec{r}, \gamma) = -C_8(\gamma) \frac{1}{r^8} \cdot f_{d8}(r, \gamma) \tag{6.7}$$

mit den Parametern  $C_{6,8}(\gamma)$ , nach Legendre-Polynomen entwickelt [209]

$$C_{6,8}(\gamma) = C_{60,80} \cdot P_0(\cos(\gamma)) + C_{62,82} \cdot P_2(\cos(\gamma)) \tag{6.8}$$

und der *Tang-Toennies*-Abschirmfunktion [210]

$$f_{dn}(r, \gamma) = 1 - \exp(-b(\gamma) r) \sum_{k=0}^n \frac{(b(\gamma) \rho)^k}{k!} \tag{6.9}$$

Hierbei sind  $a(\gamma)$  und  $b(\gamma)$  wie in (6.3) und (6.4) definiert.

Der Parameter  $C_6 = C_6(A, B)$  ist der Dispersionskoeffizient der Wechselwirkung zweier Atome / Ionen  $A$  und  $B$ . Für diesen gilt zunächst [218]

$$C_6(A, B) = \frac{3}{2} \frac{\alpha_A \alpha_B \eta_A \eta_B}{\eta_A + \eta_B} \tag{6.10}$$

Dabei ist  $\alpha_{A,B}$  die Polarisierbarkeit und  $\eta_{A,B}$  die mittleren Anregungsenergien für Atom/Ion  $A$  und  $B$ . Es gilt [218]

$$\eta_{A,B} = \sqrt{\frac{N_{A,B}}{\alpha_{A,B}}} \tag{6.11}$$

Die Definition von  $N_{A,B}$  ist nicht eindeutig. In [218] ist damit beispielsweise die Anzahl der Valenzelektronen gemeint, wohingegen in [209, 219] nur von einer effektiven Elektronenzahl gesprochen wird. Die erste Wahl überschätzt den Dispersionskoeffizienten [220]. Für zweite Wahl konnte in [221] eine empirische Formel

zur Berechnung der effektiven Elektronenzahlen angegeben werden. So findet man:  $N_{effK^+} = 7.2931$  und  $N_{effCl^-} = 6.1038$ . Die Polarisierbarkeit beider Ionensorten ist:  $\alpha_{K^+} = 5.399$  a.u. [222] und  $\alpha_{Cl^-} = 27.522$  a.u. [223]. So können die  $\eta_{A=K^+,Cl^-}$  berechnet werden.

Für homo-nukleare Gase kann die effektive Elektronenzahl gewonnen werden über [219]

$$N_{B=H_2} = \frac{16C_6^2}{9\alpha^2}$$

Man unterscheidet zwischen den Ausrichtungen des Moleküls. Die entsprechenden  $C_6$ -Koeffizienten lauten:  $C_6(H_{2,\parallel}, H_{2,\parallel}) = 2.732$  a.u. und  $C_6(H_{2,\perp}, H_{2,\perp}) = 1.564$  a.u. [224]. Für die Polarisierbarkeit von Wasserstoff entnimmt man aus [225], ebenfalls unter getrennter Betrachtungen der Ausrichtung des Moleküls:  $\alpha_{\parallel} = 6.713$  a.u. und  $\alpha_{\perp} = 4.736$  a.u. .

Mit den so gefundenen  $C_{6,\parallel}$  und  $C_{6,\perp}$  lassen sich die Koeffizienten  $C_{60}$  und  $C_{62}$  berechnen nach [209, 226]

$$\begin{aligned} C_{60} &= \frac{C_{6,\parallel} + 2C_{6,\perp}}{3} \\ C_{62} &= C_{60} \frac{C_{6,\parallel} - C_{6,\perp}}{C_{6,\parallel} + 2C_{6,\perp}} \end{aligned}$$

und man findet so die Werte in Tabelle 6.2.

	$K^+$	$Cl^-$
$C_{60}$	3.5708	16.4936
$C_{62}$	0.2690	1.3130

Tabelle 6.2: Dispersionskoeffizienten nach (6.8) für das attraktive Paarpotential (6.6) in eV·a.u.<sup>6</sup>.

Für die Dispersionskoeffizienten gilt allgemein für  $n > 3$  [217]

$$C_{2n} = \frac{3}{2} C_6(\gamma) \langle r_A^2 \rangle^{-1} \langle r_B^2 \rangle^{-1} \frac{1}{2n(2n-1)} \sum_{m=1}^{n-2} \binom{2n}{2m+1} \langle r_B^{2m} \rangle \langle r_B^{2n-2m-2} \rangle$$

Setzt man für  $n = 4$  ein, so findet man

$$C_{80}(\gamma) = \frac{3}{2} C_6(\gamma) \left( \frac{\langle r_A^4 \rangle}{\langle r_A^2 \rangle} + \frac{\langle r_B^4 \rangle}{\langle r_B^2 \rangle} \right) \quad (6.12)$$

Hierbei bezeichnen die eckigen Klammern das zeitliche Mittel bzw. den Erwartungswert einer Größe, in diesem Fall für den Ionenradius. Für die Bestimmung des Parameters  $C_{80}$  wird  $\frac{\langle r_{K^+,Cl^-}^4 \rangle}{\langle r_{K^+,Cl^-}^2 \rangle}$  benötigt. Dieser ist über einen Umweg zu erhalten. Man

entnimmt zuerst die  $C_6$  und  $C_8$  Koeffizienten der Ionen für die Wechselwirkung mit  $He$ -Atomen:  $C_{6,K^+-He} = 5.83$  a.u.,  $C_{8,K^+-He} = 80.7$  a.u.,  $C_{6,Cl^--He} = 19.8$  a.u.,  $C_{8,Cl^--He} = 530$  a.u. [211]. Weiterhin benötigt man den Wert  $\frac{\langle r_{He}^4 \rangle}{\langle r_{He}^2 \rangle} = 3.305$  a.u. [217]. Dann findet man mit (6.12)

$$\frac{\langle r_{K^+,Cl^-}^4 \rangle}{\langle r_{K^+,Cl^-}^2 \rangle} = \frac{2}{3} \frac{C_{8,K^+,Cl^- - He}}{C_{6,K^+,Cl^- - He}} - \frac{\langle r_{He}^4 \rangle}{\langle r_{He}^2 \rangle}$$

An dieser Stelle benötigt man den Wert  $\frac{\langle r_{H_2}^4 \rangle}{\langle r_{H_2}^2 \rangle} = 6.1$  [227]. Durch Einsetzen in (6.12) ergibt sich damit der Wert  $C_{80}$ . Der Koeffizient  $C_{82}$  wurde wie in [209] abgeschätzt, indem der errechnete Wert von  $C_{80}$  mit dem Wert  $\left(\frac{C_{82}}{C_{80}}\right)_{Ar-H_2}$  multipliziert wird. Der  $Ar$ -Koeffizient wurde als Abschätzung gewählt, da beide Ionen die Elektronenkonfiguration von  $Ar$  annehmen. So ergibt sich

$$C_{82} = 0.2154 \cdot C_{80} \quad (6.13)$$

Insgesamt findet man die Werte aus Tabelle 6.3.

	$K^+$	$Cl^-$
$C_{80}$	64.3975	510.6444
$C_{82}$	13.8712	109.9928

Tabelle 6.3: Dispersionskoeffizienten nach (6.8) für das attraktive Paarpotential (6.7) in eV·a.u.<sup>8</sup>.

Mit den bekannten Parametern muss das Potential entlang der Streurichtung gemittelt werden. Nehmen wir wie vorher an, dass die Streurichtung die  $x$ -Richtung definiert, dann erhält man

$$\begin{aligned} \bar{V}_6(\rho, \gamma) &= -C_6(\gamma) \frac{1}{d} \frac{1}{\rho^6} \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{1}{\left(\sqrt{1 + \left(\frac{x}{\rho}\right)^2}\right)^6} \cdot \\ &\cdot \left[ 1 - \exp\left(-b(\gamma) \rho \sqrt{1 + \left(\frac{x}{\rho}\right)^2}\right) \sum_{k=0}^6 \frac{\left(b(\gamma) \rho \sqrt{1 + \left(\frac{x}{\rho}\right)^2}\right)^k}{k!} \right] \\ &= -C_6(\gamma) \frac{1}{d} \frac{1}{\rho^5} \int_{-\infty}^{\infty} du \cdot \\ &\cdot \left( \frac{1}{\cosh^5(u)} - \frac{1}{\cosh^5(u)} \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) \sum_{k=0}^6 \frac{(b(\gamma) \rho \cosh(u))^k}{k!} \right) \end{aligned} \quad (6.14)$$

und

$$\begin{aligned}
 \bar{V}_8(\rho, \gamma) &= -C_8(\gamma) \frac{1}{d} \frac{1}{\rho^8} \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{1}{\left( \sqrt{1 + \left( \frac{x}{\rho} \right)^2} \right)^8} \cdot \\
 &\cdot \left[ 1 - \exp \left( -b(\gamma) \rho \sqrt{1 + \left( \frac{x}{\rho} \right)^2} \right) \sum_{k=0}^8 \frac{\left( b(\gamma) \rho \sqrt{1 + \left( \frac{x}{\rho} \right)^2} \right)^k}{k!} \right] \\
 &= -C_8(\gamma) \frac{1}{d} \frac{1}{\rho^7} \int_{-\infty}^{\infty} du \cdot \\
 &\cdot \left( \frac{1}{\cosh^7(u)} - \frac{1}{\cosh^7(u)} \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) \sum_{k=0}^8 \frac{(b(\gamma) \rho \cosh(u))^k}{k!} \right)
 \end{aligned} \tag{6.15}$$

Beide Summanden in (6.14) bzw. (6.15) sollen der Übersichtlichkeit halber getrennt betrachtet und mit  $I_1$  und  $I_2$  bezeichnet werden. Verinbart man noch  $m = -(n-1)$  für  $n = 6, 8$ , so ist  $m$  in jedem Fall negativ und ungerade. Dann lässt sich über partielle Integration zeigen

$$\begin{aligned}
 I_1 &= \int_{-\infty}^{\infty} \cosh^m(u) du \\
 &= \pi \cdot \prod_{j=1}^{\frac{n}{2}-1} \frac{-n+2j+1}{-n+2j}
 \end{aligned} \tag{6.16}$$

Für den Fall  $n = 6$  und  $n = 8$  ergibt sich somit

$$\begin{aligned}
 I_{1,n=6} &= \frac{3}{8} \pi \\
 I_{1,n=8} &= \frac{3}{8} \cdot \frac{5}{6} \pi
 \end{aligned}$$

Das Integral  $I_2$  bedarf einer wesentlich umfangreicheren Betrachtung.

$$I_{2,n} = \sum_{k=0}^n \frac{(b(\gamma) \rho)^k}{k!} \int_{-\infty}^{\infty} \cosh^{k-(n-1)}(u) \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \tag{6.17}$$

Für eine Berechnung des Integrals, müssen die Terme für  $k-(n-1) = 1$ ,  $k-(n-1) = 0$ ,  $k-(n-1) = -1$  und  $k-(n-1) < -1$  der Summe in (6.17) getrennt betrachtet werden.

$$k - (n - 1) = 1$$

$$\begin{aligned}
 I_{2,1} &= \int_{-\infty}^{\infty} \cosh(u) \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \\
 &= 2 \cdot K_1(b(\gamma) \rho)
 \end{aligned} \tag{6.18}$$



$$k - (n - 1) = 0$$

$$\begin{aligned} I_{2,0} &= \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \\ &= 2 \cdot K_0(b(\gamma) \rho) \end{aligned} \quad (6.19)$$

$$k - (n - 1) = -1$$

$$I_{2,-1} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\cosh(u)} \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \quad (6.20)$$

$$\begin{aligned} &= 2 \int_0^{\infty} \frac{1}{\cosh(u)} \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \\ &= 2 \left[ -\frac{\pi}{2} \exp(-b(\gamma) \rho) + 2b(\gamma) \rho \cdot \right. \\ &\quad \cdot \left. \int_0^{\infty} \arctan(e^u) \sinh(u) \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \right] \end{aligned} \quad (6.21)$$

Im letzten Schritt in (6.20) wurde eine partielle Integration durchgeführt. Vereinfachend kann man ausnutzen, dass für die Integration von 0 bis  $\infty$  der Term  $\arctan(e^u)$  sehr schnell gegen  $\frac{\pi}{2}$  konvergieren wird. Setzt man das in (6.20) ein, ergibt sich

$$\begin{aligned} I_{2,-1} &= 2 \left[ -\frac{\pi}{2} \exp(-b(\gamma) \rho) + \pi b(\gamma) \rho \int_0^{\infty} \sinh(u) \exp(-b(\gamma) \rho \cosh(u)) du \right] \\ &= \pi \cdot \exp(-b(\gamma) \rho) \end{aligned} \quad (6.22)$$

Die Integrale  $I_{2,k-(n-1)<1}$  lassen sich vollständig mit (6.18), (6.19) und (6.22) ausdrücken. Über langwierige Rechnungen ergeben sich die Beziehungen zu

$$I_{2,-2} = b(\gamma) \rho (I_{2,-1} + I_{2,1}) \quad (6.23)$$

$$I_{2,-3} = b(\gamma) \rho \left( \frac{1}{2} (I_{2,-2} + I_{2,0}) + \frac{1}{2} \frac{1}{b(\gamma) \rho} I_{2,-1} \right) \quad (6.24)$$

$$I_{2,-4} = b(\gamma) \rho \left( \frac{1}{3} (I_{2,-3} + I_{2,-1}) + \frac{2}{3} (I_{2,-1} + I_{2,1}) \right) \quad (6.25)$$

$$I_{2,-5} = b(\gamma) \rho \left( \frac{1}{4} (I_{2,-4} + I_{2,-2}) + \frac{3}{8} (I_{2,-2} + I_{2,0}) + \frac{3}{8} \frac{1}{b(\gamma) \rho} I_{2,-1} \right) \quad (6.26)$$

$$I_{2,-6} = b(\gamma) \rho \left( \frac{1}{5} (I_{2,-5} + I_{2,-3}) + \frac{4}{15} (I_{2,-3} + I_{2,-1}) + \frac{8}{15} (I_{2,-1} + I_{2,1}) \right) \quad (6.27)$$

$$\begin{aligned} I_{2,-7} &= b(\gamma) \rho \left( \frac{1}{6} (I_{2,-6} + I_{2,-4}) + \frac{5}{24} (I_{2,-4} + I_{2,-2}) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{15}{48} (I_{2,-2} + I_{2,0}) + \frac{15}{48} \frac{1}{b(\gamma) \rho} I_{2,-1} \right) \end{aligned} \quad (6.28)$$

Die gesamten gemittelten Potentiale erhalten somit die Form

$$\bar{V}_6 = -C_6(\gamma) \frac{1}{d} \frac{1}{\rho^5} \left( \frac{3}{8} \pi - \sum_{k=0}^6 \frac{(b(\gamma) \rho)^k}{k!} I_{2,k-5} \right) \quad (6.29)$$

und

$$\bar{V}_8(\gamma) = -C_8(\gamma) \frac{1}{d} \frac{1}{\rho^7} \left( \frac{3}{8} \frac{5}{6} \pi - \sum_{k=0}^8 \frac{(b(\gamma)\rho)^k}{k!} I_{2,k-7} \right) \quad (6.30)$$

### 6.1.3 Langreichweitiges Paarpotential $V_3$

$V_3$  beschreibt die anziehende Wechselwirkung zwischen dem Molekül und dem Kristall unterhalb der obersten Lage [209, 219] und wird durch eine asymptotische van-der-Waals-Wechselwirkung beschrieben [213, 226]

$$V_3(z, \gamma) = -C_3(\gamma) \frac{1}{z_{eff}^3} \quad (6.31)$$

$z_{eff}$  ist eine effektive  $z$ -Koordinate, da die Wechselwirkung mit dem Kristall unterhalb der ersten Lage stattfinden soll. Die Frage an dieser Stelle ist, wo die erste Lage aufhört und der Kristall beginnt. In [209] findet man

$$z_{eff} = z + \frac{3}{4} \sqrt{2} a \quad (6.32)$$

mit der Dicke  $D = \sqrt{2}a$  der obersten Lage. Wie für  $C_6$  gilt auch hier

$$\begin{aligned} C_3(\gamma) &= C_{30} \cdot P_0(\cos(\gamma)) + C_{32} \cdot P_2(\cos(\gamma)) \\ C_{30} &= \frac{C_{3,||} + 2C_{3,\perp}}{3} \\ C_{32} &= C_{30} \frac{C_{3,||} - C_{3,\perp}}{C_{3,||} + 2C_{3,\perp}} \end{aligned} \quad (6.33)$$

Für die Berechnung von  $C_3$  ist in [219] die Formel

$$\begin{aligned} C_3(A, B, C) &= \frac{[\eta_B \eta_C (\alpha_B + \alpha_C) (\eta_A + b\eta_B + c\eta_C) + bc\eta_A (N_B + N_C)]}{4V_{eff} \cdot b \cdot c (\eta_A + b\eta_B) (\eta_A + c\eta_C) (b\eta_B + c\eta_C)} \\ &\cdot \pi \alpha_A \end{aligned} \quad (6.34)$$

angegeben. In diesem Fall ist  $A = H_2$ ,  $B = K^+$  und  $C = Cl^-$ .  $V_{eff}$  ist das Volumen pro Formeleinheit, also

$$V_{eff} = \frac{a^3}{4}$$

Die jeweiligen Parameter  $\alpha$  und  $\eta$  sind aus den vorherigen Betrachtungen bekannt. Die Größen  $b$  und  $c$  erfüllen folgendes Gleichungssystem [219]

$$b^2 c^2 = 1 + \frac{2\pi}{3V_{eff}} (\alpha_A + \alpha_B) \quad (6.35)$$

$$b^2 \eta_B^2 + c^2 \eta_C^2 = \eta_B^2 \left( 1 + \frac{2\pi}{3V_{eff}} \alpha_B \right) + \eta_C^2 \left( 1 + \frac{2\pi}{3V_{eff}} \alpha_C \right) \quad (6.36)$$

$$(6.37)$$

Mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned} \Psi_{B,C} &= 1 + \frac{2\pi}{3V_{eff}} \alpha_{B,C} \\ \Psi &= 1 + \frac{2\pi}{3V_{eff}} (\alpha_B + \alpha_C) \\ &= \Psi_B + \Psi_C - 1 \\ \eta &= \frac{\eta_C}{\eta_B} \end{aligned}$$

vereinfacht sich das Gleichungssystem aus (6.35) und (6.36) zu

$$b^2 c^2 = \Psi \quad (6.38)$$

$$b^2 \eta_B^2 + c^2 \eta_C^2 = \eta_B^2 \Psi_B + \eta_C^2 \Psi_C \quad (6.39)$$

und lässt sich lösen zu

$$b = \sqrt{(\Psi_B + \eta^2 \Psi_C) \frac{\Psi}{\frac{\Psi_B}{\eta^2} + \Psi_C}} \quad (6.40)$$

$$c = \frac{\sqrt{\Psi}}{b} \quad (6.41)$$

Damit lassen sich die Werte aus Tabelle 6.4 berechnen.

$C_{30}$	$21.9 \cdot 10^{-3}$
$C_{32}$	$1.7 \cdot 10^{-3}$

Tabelle 6.4: Dispersionskoeffizienten nach (6.33) für das langreichweitige Paarpotential  $V_3$ .

Da das Potential  $V_3$  nur eine  $z$ -Abhängigkeit besitzt, entfällt eine Mittelung entlang der Streurichtung.

### 6.1.4 Die Quadrupolwechselwirkung $V_{els}$

Die Wechselwirkung des Quadrupolmoments des Moleküls mit der ionischen Oberfläche wird mit dem Potentialbeitrag  $V_{els}$  berücksichtigt [228]

$$\begin{aligned}
 V_{els}(\vec{r}, \theta, \phi) = & -\Theta \sqrt{\frac{\pi}{30}} \sum_{n,m}^0 \left[ A_{nm} e^{iG(nx+my)} e^{-\gamma_{nm}z} \left( e^{2i\xi} Y_{2,2}(\theta, \phi) + \right. \right. \\
 & + e^{-2i\xi} Y_{2,-2}(\theta, \phi) - 2ie^{i\xi} Y_{2,1}(\theta, \phi) + 2ie^{-i\xi} Y_{2,-1}(\theta, \phi) - \\
 & \left. \left. \sqrt{6} Y_{2,0}(\theta, \phi) \right) \right] \quad (6.42)
 \end{aligned}$$

mit [209]

$$\begin{aligned}
 G &= \sqrt{\frac{2\pi}{d}} \\
 \gamma_{nm} &= G \sqrt{n^2 + m^2} \\
 A_{nm} &= \frac{G^2}{2\pi} \frac{1 - e^{-\gamma_{nm} \frac{d}{\sqrt{2}}}}{1 - e^{-\gamma_{nm} \sqrt{2}d}} \gamma_{nm} (1 - (-1)^{n+m}) \\
 e^{i\xi} &= \frac{n - i \cdot m}{\sqrt{n^2 + m^2}}
 \end{aligned}$$

$\Theta$  ist das Quadrupolmoment des  $H_2$ -Moleküls, welches  $\Theta = 0.4568$  a.u. [228] ist.  $Y_{nm}(\theta, \phi)$  sind Kugelflächenfunktionen, abhängig von der Ausrichtung  $\theta$  und  $\phi$  des Moleküls im Raum. Die Summe  $\sum_{nm}^0$  soll bedeuten, dass über alle ganzen Zahlen  $n$  und  $m$  bis auf die Kombination  $n = m = 0$  summiert wird. Aufgrund der Proportionalität  $V_{els} \sim \exp(-G\sqrt{n^2 + m^2}z)$ , werden Terme mit großen  $n$  und  $m$  sehr klein und somit in der Summe vernachlässigbar sein. Die Summe wurde somit auf die Kombinationen  $|n| + |m| \leq 3$  beschränkt. Die Definition von  $G$  unterscheidet sich in [228], in der keine Wurzel verwendet wird, und in [209], in der die Wurzel wie oben angegeben wird. Hier wird die Wurzel als Skalierungsfaktor interpretiert und verwendet.

Die  $x$ -Abhängigkeit besteht in Form eines Faktors  $\exp(iG \cdot nx)$ . Man kann zeigen, dass im Zuge der Mittelung  $\int_{-\infty}^{\infty} \exp(iG \cdot nx) = 0$  ist. Damit entfallen in der Mittelung alle Terme  $n \neq 0$ . Da die restlichen Terme keinerlei  $x$ -Abhängigkeit besitzen, ist für sie keine Mittelung notwendig.

Der Ansatz (6.42) gilt nur für rein ionische Bindungen im Kristall [228]. Da die Bindung in  $KCl$  zu 82% ionisch ist [229, 230], gilt dieser Ansatz also in guter Näherung.

### 6.1.5 Dipol-Wechselwirkung mit der Oberfläche $V_{ind}$

Das Potential  $V_{ind}$  beschreibt das Wechselwirkungspotential zwischen der Oberfläche und dem Dipol, den das elektrische Feld der Oberfläche im  $H_2$ -Molekül erzeugt. Es besitzt die Form [209]

$$V_{ind}(\vec{r}, \theta, \phi) = V_{ind}^0(\vec{r}) + V_{ind}^2(\vec{r}, \theta, \phi) \quad (6.43)$$

mit einem isotropen

$$V_{ind}^0(\vec{r}) = -\frac{64\pi^2\alpha_0}{d^4}e^{-2Gz}\left(\frac{1}{1+e^{-\sqrt{2}\pi}}\right) \cdot (1 + \cos(Gx)\cos(Gy)) \quad (6.44)$$

und einem anisotropen Anteil

$$\begin{aligned} V_{ind}^2(\vec{r}, \theta, \phi) = & \alpha_2 G^2 \sum_{n,m}^0 \sum_{n',m'}^0 \Phi_{nm} \Phi_{n'm'} \left( \left( \frac{nn'}{2} - \frac{mm'}{2} - i \cdot nm' \right) Y_{2,2}(\theta, \phi) + \right. \\ & + \left( \frac{nn'}{2} - \frac{mm'}{2} + i \cdot nm' \right) Y_{2,-2}(\theta, \phi) + \\ & + \left( -i \cdot n\sqrt{n'^2 + m'^2} - m\sqrt{n'^2 + m'^2} \right) Y_{2,1}(\theta, \phi) + \\ & + \left( i \cdot n\sqrt{n'^2 + m'^2} - m\sqrt{n'^2 + m'^2} \right) Y_{2,-1}(\theta, \phi) + \\ & + \left( -\frac{1}{2}\sqrt{\frac{2}{3}}nn' - \frac{1}{2}\sqrt{\frac{2}{3}}mm' - \right. \\ & \left. \left. - \frac{1}{2}\sqrt{\frac{8}{3}}\sqrt{n^2 + m^2}\sqrt{n'^2 + m'^2} \right) Y_{2,0}(\theta, \phi) \right) \end{aligned} \quad (6.45)$$

$\alpha_0$  und  $\alpha_2$  stellen die isotrope bzw. anisotrope Polarisierbarkeit dar. Sie berechnen sich nach [226]

$$\begin{aligned} \alpha_0 &= \frac{\alpha_{||} + 2\alpha_{\perp}}{3} \\ \alpha_2 &= \frac{1}{3}\sqrt{\frac{6\pi}{5}}(\alpha_{||} - \alpha_{\perp}) \end{aligned}$$

$\Phi = \sum_{n,m}^0 \Phi_{nm}$  ist das elektrostatische Potential. In [228] findet man

$$\Phi_{nm} = \frac{A_{nm}}{\gamma_{nm}} e^{i \cdot G(nx+my)} e^{-\gamma_{nm}z} \quad (6.46)$$

Wie vorher laufen die Summen über alle ganzen Zahlen  $n, m, n'$  und  $m'$ , bis auf die Kombinationen  $n = m = 0$  und  $n' = m' = 0$ . Durch die Proportionalität  $V_{ind}^2 \sim \exp(-\gamma_{nm}z) \exp(-\gamma_{n'm'}z)$  werden die Terme der Summe für steigende  $n, m, n', m'$  rasch vernachlässigbar klein. Für die Simulationen wurden lediglich die Terme  $|n, n'| + |m, m'| \leq 1$  verwendet.

Auch hier kann man ganz analog zum Fall  $\int_{-\infty}^{\infty} \exp(i \cdot Gnx) = 0$  zeigen, dass  $\int_{-\infty}^{\infty} \cos(nx) = 0$  ist. Anhand der Definition von  $\Phi_{nm}$  bzw.  $\Phi_{n'm'}$  entfallen bei der Mittelung alle Terme mit  $n, n' \neq 0$ . Es bleibt also lediglich eine Abhängigkeit von  $y$  und  $z$  bestehen.



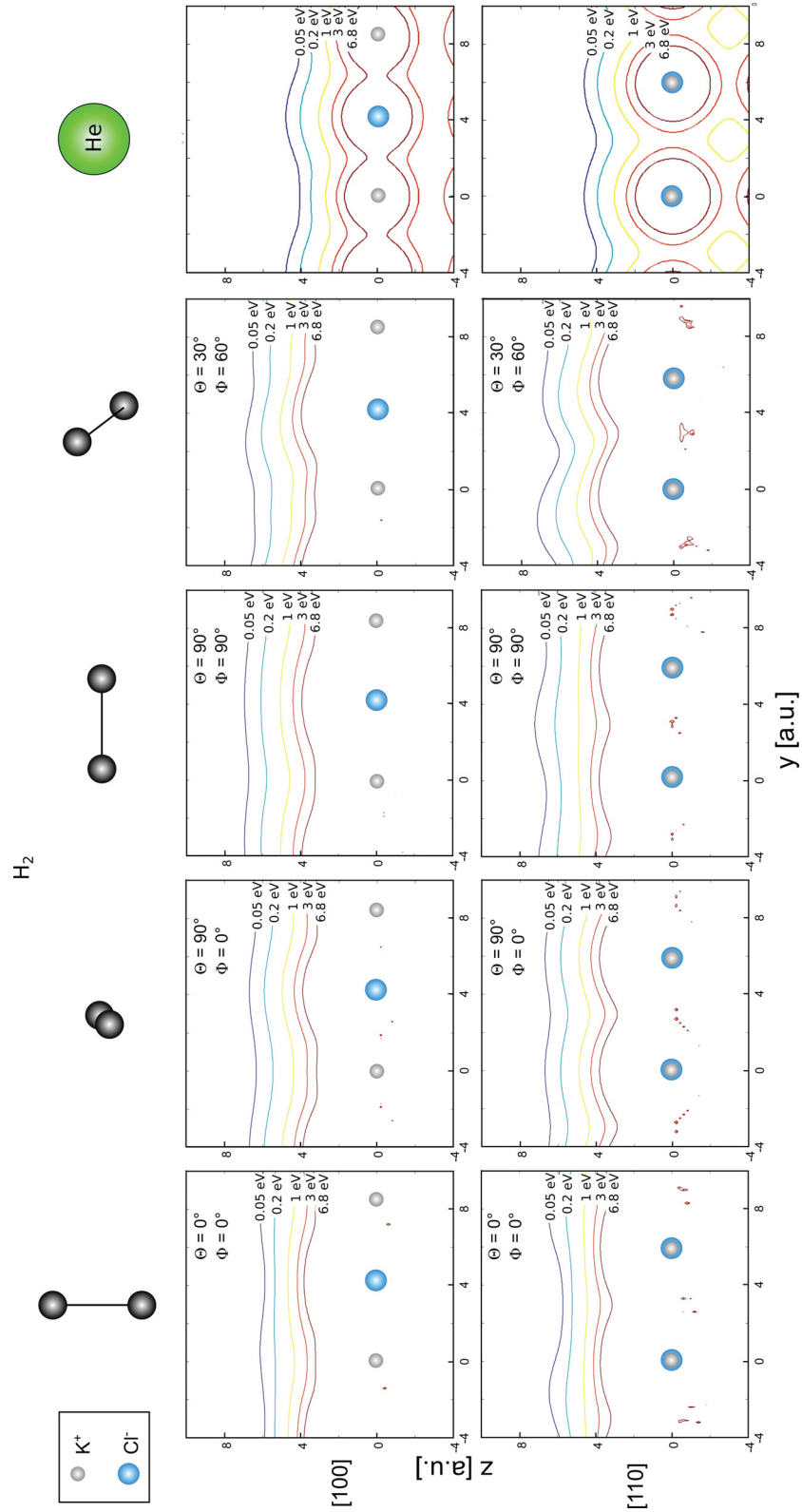


Abbildung 6.3: Darstellung der Abhängigkeit der Potentialform von der Ausrichtung ( $\Theta, \Phi$ ) des  $H_2$ -Projektils im Raum für die Streuung an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der  $[100]$ - sowie der  $[110]$ -Richtung für die verschiedenen Äquipotentiallinien  $E = \{0.05, 0.2, 1, 3, 6.8\}$  eV. Zum Vergleich ist das Wechselwirkungspotential (Hartree-Fock Potential, berechnet von *K. Gärtner*) von  $He$ -Projektilen entlang der jeweiligen Richtung gezeigt.

### 6.1.6 Ausrichtung der Moleküle

Entscheidend für das Potential ist die Ausrichtung des Moleküls bezogen auf die Oberfläche. Die Winkel  $\theta$  und  $\phi$  beschreiben die Ausrichtung des Moleküls im Raum, zunächst ohne die Oberfläche zu berücksichtigen. Das funktioniert einfach in Kugelkoordinaten. Der Winkel  $\gamma$  ist der Winkel zwischen dem Ortsvektor des Schwerpunktes des Moleküls bezogen auf ein Oberflächen-Ion, bzw. in diesem Fall die Atomkette, mit dem bzw. mit der es wechselwirkt, und der Molekülachse. Der Abstand  $\Delta x$  kann zu  $\Delta x = 0$  gewählt werden, da durch die Mittelung des Potentials die  $x$ -Koordinaten ohnehin keine Rolle spielt. Mit dem Abstand  $\Delta y$  und  $\Delta z$  für den Abstand in  $y$ - bzw. in  $z$ -Richtung findet sich über geometrische Überlegungen für den Winkel  $\gamma$  der Ausdruck

$$\cos(\gamma) = \frac{\Delta y \cdot \sin(\theta) \sin(\phi) + \Delta z \cdot \cos(\theta)}{\rho} \quad (6.47)$$

Dabei ist wie vorher  $\rho = \sqrt{\Delta y^2 + \Delta z^2}$  der Abstand zur Atomkette. Die Winkel  $\theta$  und  $\phi$  nehmen dabei Werte von  $[0, \pi]$  bzw.  $[0, 2\pi]$  an. Da die Experimente nicht gezielt die Wechselwirkungen der Moleküle mit der Oberfläche untersuchten, wurde nicht mit polarisierten Molekülen gemessen. Folglich ist die Ausrichtung im Raum zufällig bestimmt, was eine Mischform der möglichen Rotationszustände des Moleküls bedeutet. Somit führen Rotationsübergänge wieder zu einem gemischten Zustand, sodass diese Übergänge für dieses einfache Modell nicht betrachtet wurden.

In Abbildung 6.3 ist das Wechselwirkungspotential für die Streuung entlang der  $[100]$ - sowie der  $[110]$ -Richtung der  $KCl(001)$ -Fläche bei den verschiedenen Ausrichtungen  $\Theta = \{0^\circ, 30^\circ, 90^\circ\}$  und  $\Phi = \{0^\circ, 60^\circ, 90^\circ\}$  des  $H_2$ -Moleküls gezeigt. Zum Vergleich ist zusätzlich jeweils das Wechselwirkungspotential für  $He$ -Projekteile (Hartree-Fock Potential, berechnet von *K. Gärtner*) dargestellt. Zu sehen ist, dass die Potentialform für die Moleküle sehr empfindlich von der Ausrichtung abhängt. Der Grund dafür ist das Quadrupolmoment des Moleküls (siehe Abbildung 6.4). Durch die Ladungsverteilung entlang der Molekülachse, erhält das Molekül ein Quadrupolmoment mit positiven Anteilen an den Enden (positive Partialladung  $\delta^+$  an den Wasserstoffatomen) und einem negativen Anteil im Schwerpunkt (negative Partialladung  $2\delta^-$ ) [7]. Rotiert das Molekül in der Streuebene<sup>1</sup>, überwiegt die Wechselwirkung mit den positiven Anteilen des Quadrupols, sodass das Wechselwirkungspotential zwischen Molekül und  $K^+$ -Ion repulsiv und zwischen Molekül und  $Cl^-$ -Ion attraktiv ist. Bei Rotation in der Oberflächenebene, überwiegt die Wechselwirkung mit dem negativen Anteil des Quadrupols. Somit ist das Potential zwischen Molekül und  $K^+$ -Ion attraktiv, zwischen Molekül und  $Cl^-$ -Ion repulsiv.

Abbildung 6.6 zeigt eine Zusammenstellung der Wechselwirkungspotentiale zwischen der  $KCl(001)$ -Fläche und dem  $H_2$ -Molekül für die Streuung entlang der  $[100]$ -Richtung bei verschiedensten Ausrichtungen des Moleküls. Die Streuung in  $[100]$ -Richtung findet entlang Ionenketten mit jeweils einer Ionensorte statt („reine Ketten“). Die Potentialform kann vollständig durch obige Überlegungen zur Wechselwirkung mit den  $Cl^-$ - und  $K^+$ -Ionen für die Rotation in der Streu- oder der Oberflächenebene erklärt werden. Die Korrugation ist durch die größeren  $Cl^-$ -Ionen und den negativen Anteil des Quadrupolmomentes des Wasserstoffmoleküls für die Rotation in der Oberflächenebene größer.

<sup>1</sup>Die Streuebene wird von der Oberflächennormalen und dem einfallenden Projektilstrahl aufgespannt.

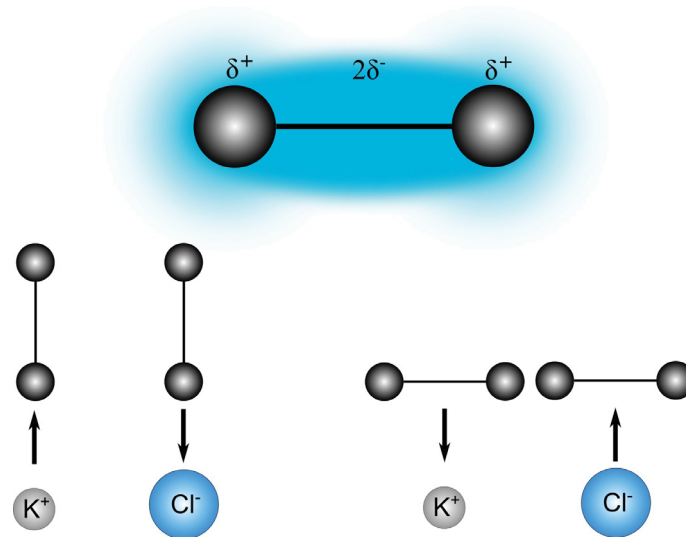


Abbildung 6.4: Darstellung der Ladungsverteilung im Wasserstoff-Molekül mit ange deuteten Partialladungen  $\delta^+$  und  $\delta^-$  sowie die Wechselwirkung des Moleküls mit den Oberflächenionen  $K^+$  und  $Cl^-$  bei Rotation in der Streuebene (links) und der Oberflächenebene (rechts). Die Pfeile deuten die Richtung des Kraftvektors an.

In  $[110]$ -Richtung findet die Streuung entlang identischer Ionenketten, bestehend aus beiden Ionensorten, statt („gemischte Ketten“). Eine Zusammenstellung der Wechselwirkungspotentiale zwischen der  $KCl(001)$ -Fläche und dem  $H_2$ -Molekül für die Streuung entlang der  $[110]$ -Richtung bei verschiedensten Ausrichtungen des Moleküls ist in Abbildung 6.7 dargestellt. Das Wechselwirkungspotential wird von den größeren  $Cl^-$ -Ionen dominiert. Dadurch ist die Quadrupolwechselwirkung zwischen den Ionenketten am größten. Wie in Abbildung 6.5 zu sehen ist, bestimmen im Wesentlichen die Quadrupolanteile der Wechselwirkung  $V_8$  und  $V_{els}$  das Wechselwirkungspotential. Folglich ergibt sich für die Rotation in der Oberflächenebene ein repulsives Wechselwirkungspotential zwischen den Ionenketten, da hier die repulsiven Kräfte von zwei Ionenketten auf den Schwerpunkt des Moleküls wirken. Bei der Rotation in der Streuebene ist das Wechselwirkungspotential zwischen den Ionenketten hingegen entsprechend attraktiv.

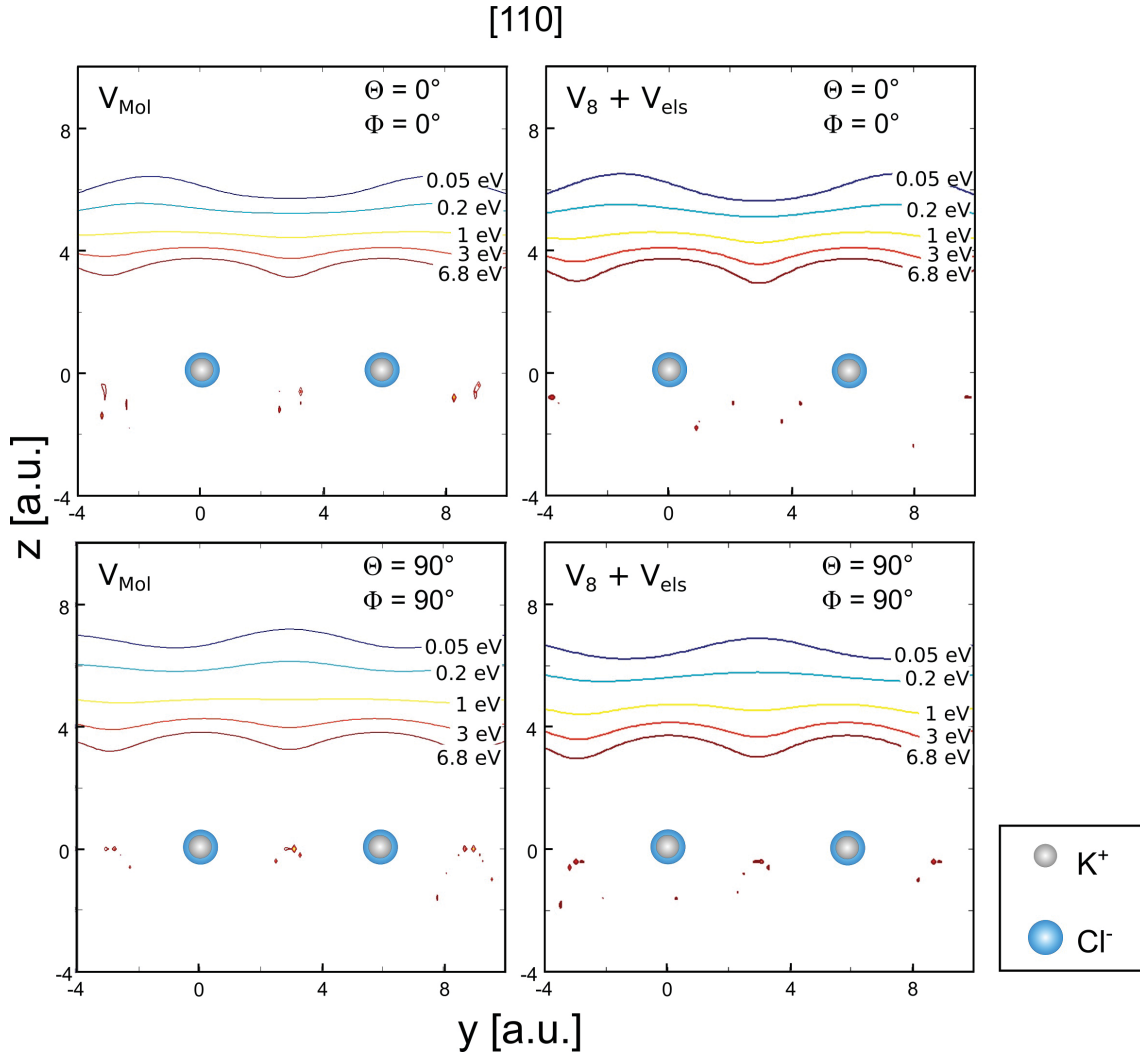


Abbildung 6.5: Gezeigt ist der Anteil der Quadrupolwechselwirkung, über die Terme  $V_8$  und  $V_{\text{els}}$ , an dem gesamten Wechselwirkungspotential  $V_{\text{Mol}}$  aus (6.1) zwischen einem  $H_2$ -Molekül und einer  $KCl(001)$ -Fläche. Dieses ergibt sich für die Streuung entlang der [110]-Richtung bei den verschiedenen Ausrichtungen  $\Theta = \{0, 90\}^\circ$  und  $\Phi = \{0, 90\}^\circ$  des Moleküls für die Äquipotentiallinien  $E = \{0.05, 0.2, 1, 3, 6.8\}$  eV.

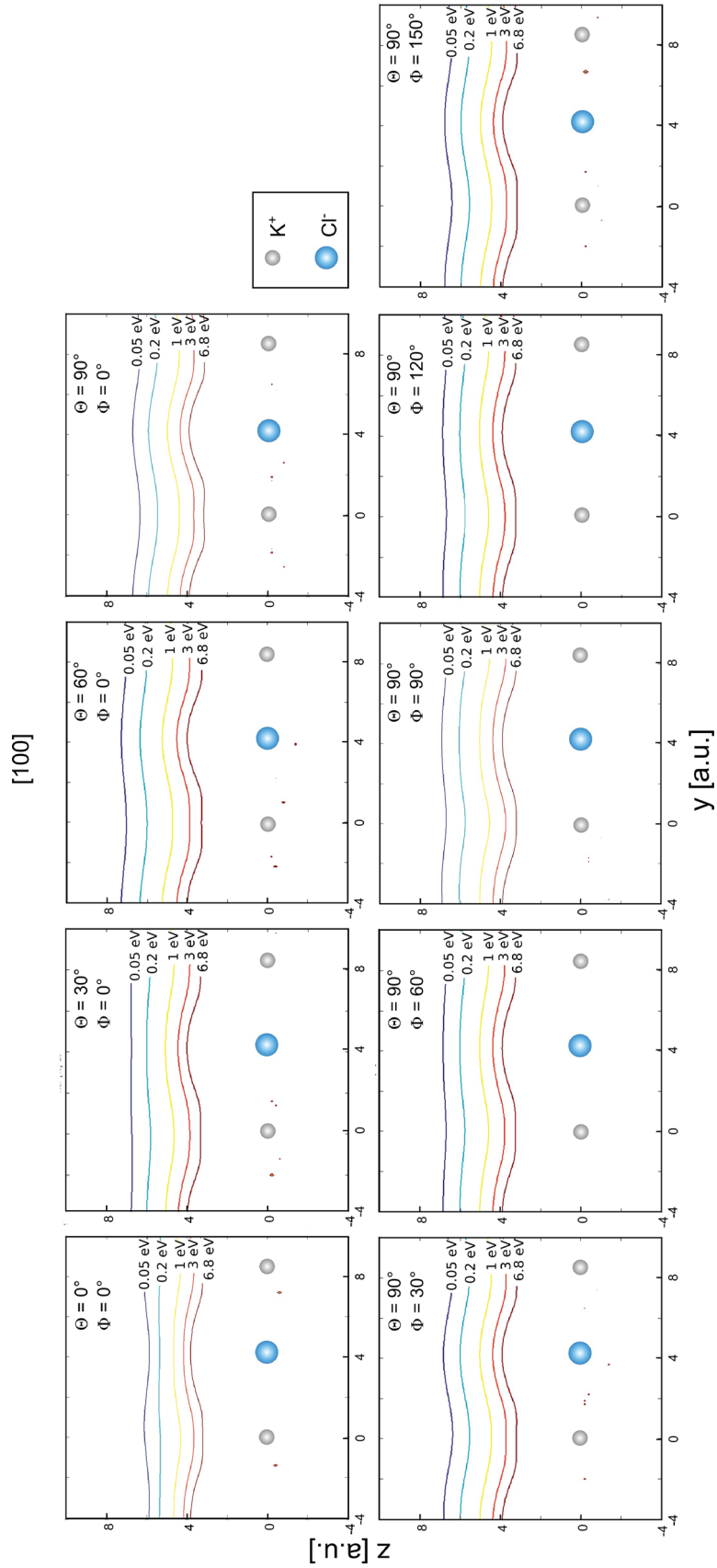


Abbildung 6.6: Darstellung der Abhängigkeit der Potentialform von der Ausrichtung  $(\Theta, \Phi)$  des  $H_2$ -Projektils im Raum für die Streuung an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der  $[100]$ -Richtung für die verschiedenen Äquipotentiallinien  $E = \{0.05, 0.2, 1, 3, 6.8\}$  eV.

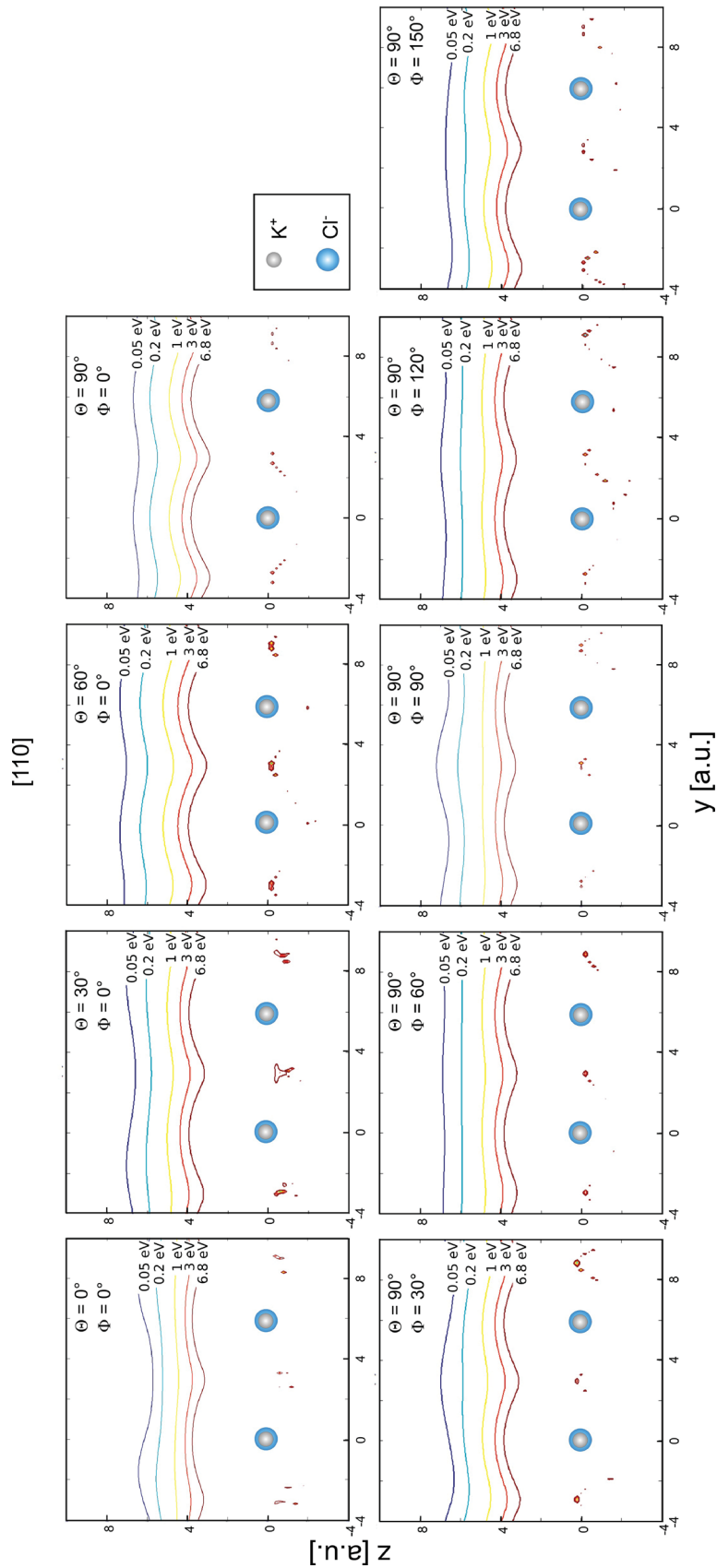


Abbildung 6.7: Darstellung der Abhängigkeit der Potentialform von der Ausrichtung ( $\Theta, \Phi$ ) des  $H_2$ -Projektils im Raum für die Streuung an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der  $[110]$ -Richtung für die verschiedenen Äquipotentiallinien  $E = \{0.05, 0.2, 1, 3, 6.8\}$  eV.



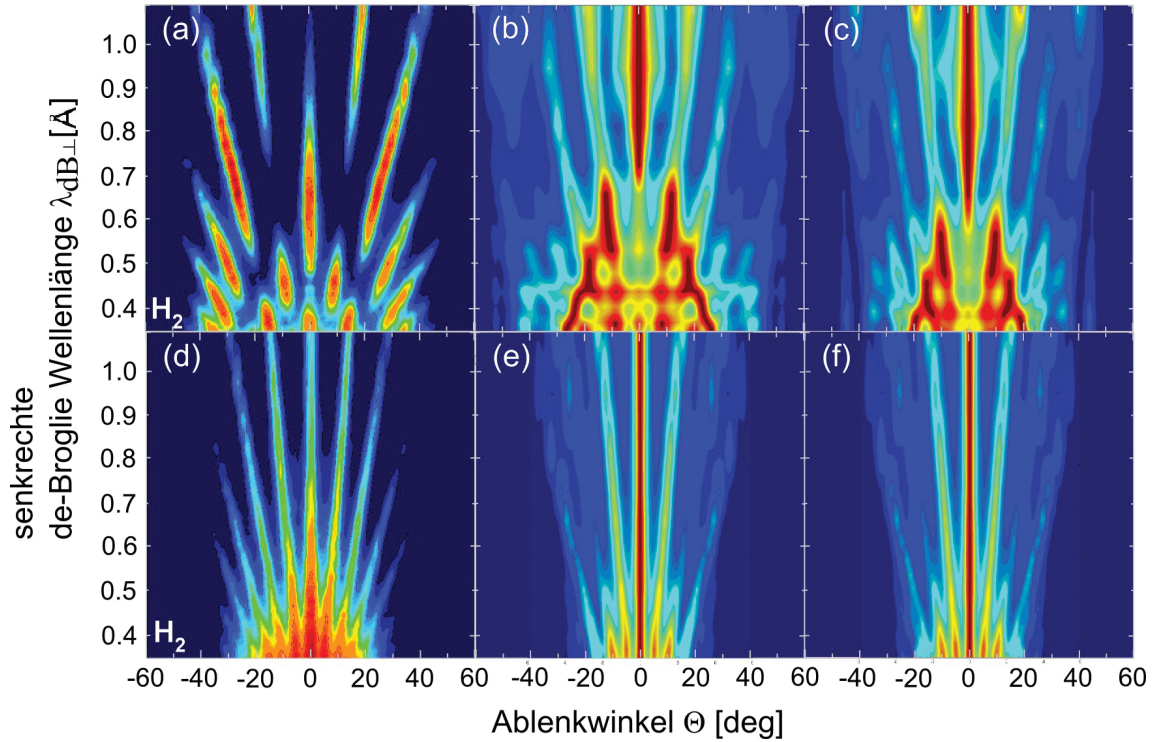
## 6.2 Simulation der FAD-Messungen

Für die Simulationen wurde ein Energiebereich von 200 bis 2000 eV in 100 eV Schritten durchfahren. Es zeigte sich, dass der Rechenaufwand für die Simulationen extrem hoch ist, sodass die möglichen Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$  in 30°-Schritten variiert wurden. Die Simulationen für eine feste Ausrichtung der Moleküle verlief dann völlig analog zu den Simulationen für atomare Projektile mit dem vorgestellten Wechselwirkungspotential. Da die Intensität der nullten Beugungsordnung sonst überwiegen und die Intensitätsverläufe der höheren Beugungsordnungen überdecken wurde, wurde analog zu den Messungen und Simulationen an der Saphir-(0001)-Fläche die Intensität der Beugungsspektren gauß-förmig vom nullten Beugungsreflex ausgehend abgeschwächt.

*KCl*-Kristalle wachsen in der kubisch-flächenzentrierten *NaCl*-Struktur, die in diesem Fall durch *fcc*- $K^+$ -Gitter und dazu um eine halbe Raumdiagonale verschobene *fcc*- $Cl^-$ -Gitter gebildet wird. Die Gitterkonstante beträgt  $a = 6.28 \text{ \AA}$  [231, 232]. Die (001)-Fläche hat somit die Gitterparameter  $a = b = 4.45 \text{ \AA}$  und  $c = 6.28 \text{ \AA}$  mit  $\beta = 90^\circ$  [232]. In den Simulationen wurde eine perfekte Fläche, insbesondere ohne Rekonstruktionen angenommen.

Die Messungen mit  $H_2$ -Projektile entlang der [100]- sowie der [110]-Richtung unter einem Einfallswinkel von jeweils  $\Phi_{in} = 0.7^\circ$  für einen Energiebereich von  $E = 200$ -2000 eV, sind in Abbildung 6.8 (a) und (d), die Ergebnisse der Simulationen mit dem Wechselwirkungspotential (6.1) für beide Richtungen in Abbildung 6.8 (b) und (e) gezeigt. Für die [110]-Richtung ergaben sich gute Übereinstimmungen zwischen der Simulation und dem Experiment. Insbesondere die nicht vorhandene oder nur sehr schwache Modulation der Beugungsordnungen konnte reproduziert werden. Die nullte und erste Beugungsordnung stimmen in den Simulationen mit der Messung überein. Die Intensität der zweiten Beugungsordnung fällt jedoch zu rasch mit steigender senkrecht-de-Broglie Wellenlänge ab. In der Messung kann man sie bis zu einer senkrecht-de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{db\perp} = 0.75 \text{ \AA}$  beobachten, während die Intensität in den Simulationen bereits bei einer senkrecht-de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{db\perp} = 0.5 \text{ \AA}$  verschwindet. Die dritte und höhere Beugungsordnungen entsprechen in ihrem Intensitätenverlauf in den Simulationen wieder denen in der Messung. Die insgesamt gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation für die Streuung entlang der [110]-Richtung steht im Gegensatz zu der Beschreibung der Experimente für die Streuung entlang der [100]-Richtung. Die Intensitätsmodulationen der Beugungsreflexe variieren in den Simulationen über die senkrechte de-Broglie Wellenlänge nahezu gespiegelt zu dem Verlauf der Intensitäten in den Messungen. Besonders ins Auge fällt die Modulation der nullten bis zweiten Beugungsordnung. In den Bereichen hoher Intensität der nullten Beugungsordnung in den Messungen ( $\lambda_{db\perp} = 0.5$ - $0.8 \text{ \AA}$ ) befindet sich ein Bereich niedriger Intensität in den Simulationen. Gleiches gilt für die erste ( $\lambda_{db\perp} = 0.55$ - $0.75 \text{ \AA}$ ) und zweite Beugungsordnung ( $\lambda_{db\perp} = 0.6$ - $0.9 \text{ \AA}$ ). Man findet dies auch für Bereiche niedriger Intensität in den Messungen im Vergleich zu den Simulationen.

$$\text{H}_2 \rightarrow \text{KCl}(001) \Phi_{\text{in}} = 0.7^\circ$$



Abbildungung 6.8: Beugungskarten der Streuung mit  $\text{H}_2$ -Projektilen an der  $\text{KCl}(001)$ -Fläche entlang der  $[100]$ - ((a) - (c)) und  $[110]$ -Richtung ((d) - (f)). Gezeigt sind die jeweiligen Messungen für einen Einfallswinkel von jeweils  $\Phi_{\text{in}} = 0.7^\circ$  ((a) und (d)), die Simulationen für das Potential (6.1) ((b) und (e)) sowie für ein angepasstes Potential ((c) und (f)) (Details siehe Text).

Für eine bessere Übereinstimmung der Simulationen mit den Messungen wurden mehrere Anpassungen des Potentials durchgeführt. Die Anpassungen konnten aufgrund der Komplexität des Potentials und des Rechenaufwands nur grob vorgenommen werden. Eine erfolgreiche Anpassung war das Abschwächen der attraktiven Paar-Potentiale  $V_6$  und  $V_8$  um 10%. Die Simulationen sind in Abbildung 6.8 (c) und (f) gezeigt. Die Simulationen für die Streuung entlang der  $[110]$ -Richtung blieben nahezu unverändert. Lediglich das Abklingen der Intensität der zweiten Beugungsordnung mit steigender senkrecht-de-Broglie Wellenlänge war reduziert. Andererseits konnte die Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment in  $[100]$ -Richtung deutlich verbessert werden. Das Abklingen der nullten Beugungsordnung für senkrecht-de-Broglie Wellenlängen  $\lambda_{db\perp} \geq 0.8 \text{ \AA}$  ist zwar weiterhin unterschätzt, aber das Verhalten für  $\lambda_{db\perp} < 0.8 \text{ \AA}$  entspricht nun nahezu dem Experiment. Das Abklingen der Intensität der ersten Beugungsordnung ist ebenfalls unterschätzt. Ist im Experiment in der ersten Beugungsordnung für senkrecht-de-Broglie Wellenlängen  $\lambda_{db\perp} = 0.55\text{-}0.75 \text{ \AA}$  keine Intensität mehr nachzuweisen, fällt die Intensität in der Simulation erst ab einer senkrecht-de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{db\perp} = 0.6 \text{ \AA}$  ab, steigt jedoch im Einklang mit dem Experiment ab einer senkrecht-de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{db\perp} = 0.75 \text{ \AA}$  wieder an. Die Modulation der zweiten Beugungsordnung kann nach wie vor nur ansatzweise wiedergegeben werden. Der Abfall der

Intensität bei  $\lambda_{db\perp} = 0.5 \text{ \AA}$  beginnt weiterhin erst bei größeren Wellenlängen, als im Experiment. Dort fällt die Intensität bereits bei einer senkrecht-de-Broglie Wellenlänge von  $\lambda_{db\perp} = 0.45 \text{ \AA}$  ab und steigt für Wellenlängen  $\lambda_{db\perp} = 0.55\text{-}0.9 \text{ \AA}$  wieder an. Diesen Bereich erhöhter Intensität gibt die Simulation nicht wieder. Man erkennt lediglich einen etwa konstanten Intensitätsverlauf. Die dritte Beugungsordnung der Simulation ist hingegen in guter Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Übereinstimmungen höherer Beugungsordnungen zwischen Experiment und Simulation sind gut.

Für eine Erklärung, warum die Modulation der Intensitäten bei der Streuung von  $H_2$ -Molekülen für die Beugungskarte in  $[100]$ -Richtung erhalten bleibt, während sie in  $[110]$ -Richtung verschwindet, kann man zunächst die Wechselwirkungspotentiale vergleichen (siehe Abbildung 6.3). Wie in den Abbildungen 6.1 und 6.2 zu sehen ist, zeigen die Beugungskarten bei der Streuung mit  $He$ -Projektilen eine ausgeprägte Intensitätsmodulation der Beugungsreflexe in beiden Richtungen. Betrachtet man das jeweilige Wechselwirkungspotential (Hartree-Fock Potential, berechnet von K. Gärtner) in Abbildung 6.3 zeigt sich, dass es für beide Richtungen relativ ähnlich aussieht und die Äquipotentiallinien in beiden Richtungen über einen großen Energiebereich ihre prinzipielle Form nahezu beibehalten. Ebenfalls in Abbildung 6.3 und in Abbildung 6.6 ist zu sehen, dass das Wechselwirkungspotential für die Streuung mit  $H_2$ -Molekülen entlang der  $[100]$ -Richtung die Form des Potentials für die Streuung mit  $He$ -Projektilen für die meisten Ausrichtungen des Moleküls beibehält. Auch dass die Form der Äquipotentiallinien über einen großen Energiebereich nahezu konstant ist, stimmt mit dem Wechselwirkungspotential für  $He$  überein. Somit ist es wenig überraschend, dass die Modulation der Beugungsintensitäten mit der senkrecht-de-Broglie Wellenlänge, wie in Abbildung 6.1 zu sehen ist, nahezu unverändert bleibt.

Der Vergleich der Wechselwirkungspotentiale in Abbildung 6.3 für die Streuung mit  $He$ - und  $H_2$ -Projektilen entlang der  $[110]$ -Richtung zeigt hingegen deutlich unterschiedliche Formen der Äquipotentiallinien. Ein Minimum der Äquipotentiallinien zwischen den Ionenketten bei der Streuung mit  $He$ -Projektilen stellt sich bei der Streuung mit  $H_2$ -Projektilen für die meisten Ausrichtungen des Moleküls als ein Maximum dar. Grund ist, wie in Abbildung 6.5 gezeigt, die Quadrupolwechselwirkung zwischen der Oberfläche und dem Schwerpunkt des  $H_2$ -Moleküls. Zwischen den Ketten wirken auf das Molekül repulsive Kräfte bei der Rotation in der Oberflächenebene durch die Wechselwirkung mit zwei Ionenketten. Zusätzlich ist die Form der Äquipotentiallinien, im Gegensatz zu der Streuung mit  $He$ -Projektilen nicht mehr über einen großen Energiebereich konstant. Sie ändert sich drastisch mit variierender senkrecht-de-Broglie Wellenlänge. Die veränderte Gestalt des Wechselwirkungspotentials aufgrund der Quadrupolwechselwirkung zwischen der  $KCl(001)$ -Oberfläche und dem  $H_2$ -Molekül sorgt also dafür, dass die Modulation der Intensität der Beugungsreflexe in Abhängigkeit von der senkrecht-de-Broglie Wellenlänge nicht wie in  $[100]$ -Richtung die selbe Gestalt, wie für die Streuung mit  $He$ -Projektilen haben kann.

In Abbildung 6.8 wurden Beugungskarten für die Simulationen der Streuung mit  $H_2$ -Projektilen nach der Mittelung über die möglichen Ausrichtungen des Moleküls dargestellt. Diese zeigen, wie die Messung für die Streuung entlang der  $[110]$ -Richtung, keine Modulation der Beugungsintensitäten. Betrachtet man sich separat die Beugungskarten einzelner Ausrichtungen des Moleküls in einer qualitativen Abschätzung (siehe Abbildung 6.9; Rotationsübergänge werden nach wie vor nicht

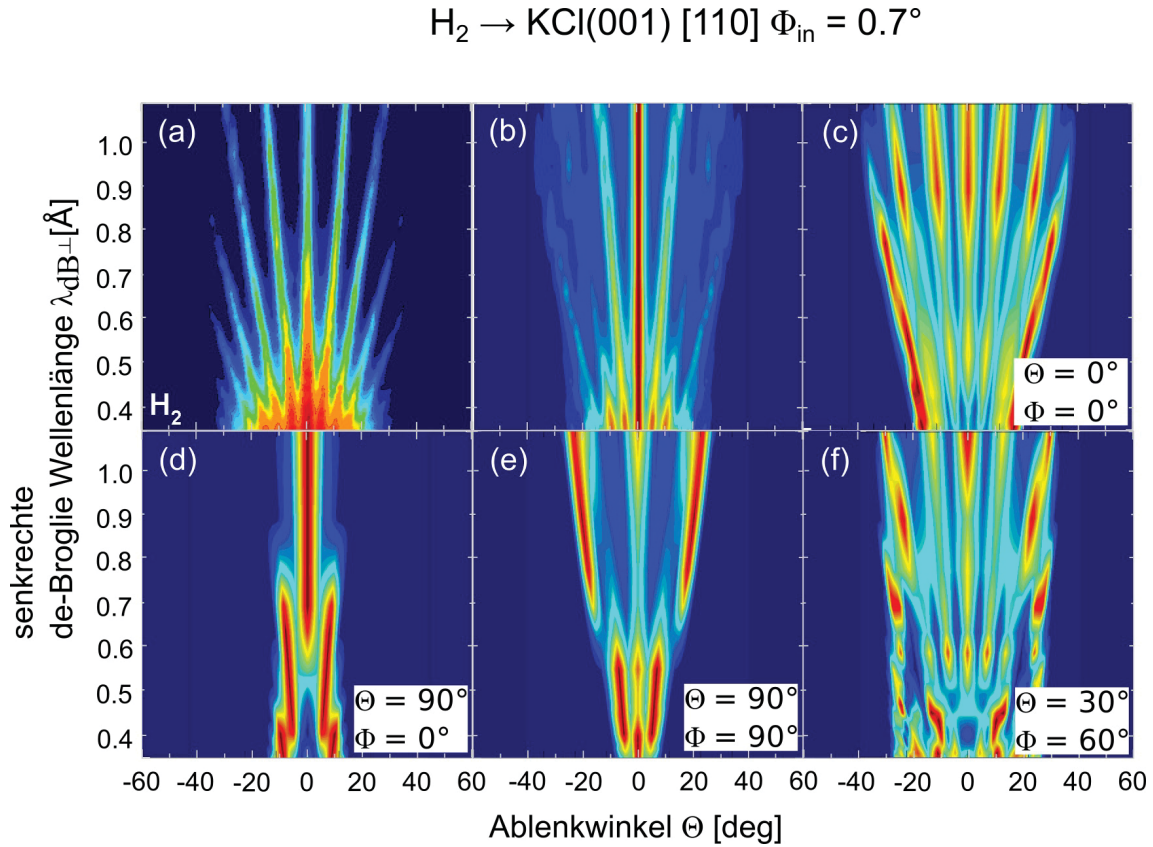


Abbildung 6.9: Beugungskarten für die Streuung von  $H_2$ -Molekülen entlang der  $[110]$ -Richtung der  $KCl(001)$ -Fläche unter einem Einfallswinkel von  $\Phi_{in} = 0.7^\circ$  für einen Energiebereich von  $E = 200\text{--}2000$  eV. (a) Die Messung (Abbildung und Messung von *M. Busch*). (b) Die Simulation, nach der Mittelung über alle Ausrichtungen des Moleküls. (c)-(f) Isolierte Anteile an der gesamten Beugungskarte für verschiedene Ausrichtungen des Moleküls.

betrachtet) zeigt sich jedoch eine teilweise stark ausgeprägte Intensitätsmodulation. Somit entfällt die Modulation erst durch die Mittelung über alle Ausrichtungen des Moleküls. Die Mittelung ist jedoch notwendig, da mit unpolarisierten Molekül-Strahlen gearbeitet wurde<sup>2</sup>. Die Form des Potentials ändert sich durch die Quadrupolwechselwirkung also gerade so, dass sich die Intensitätsmodulation für verschiedene Ausrichtungen des Moleküls bei der Streuung kompensieren. Die Mittelung über alle Ausrichtungen führt dann dazu, dass die sich ergebene Beugungskarte keine Modulation der Beugungslinienintensität aufweist. Für eine weitere Untersuchung wäre es vonnöten gezielt polarisierte Molekül-Strahlen zu erzeugen und so mit festen Ausrichtungen der Moleküle zu messen. Die Auswertung müsste dann jedoch so erweitert werden, dass in den Simulationen einzelner Ausrichtungen der Moleküle ebenfalls Rotationsübergänge berücksichtigt werden.

<sup>2</sup>Polarisiert meint in diesem Fall, dass die Moleküle nur eine feste Ausrichtung besitzen.

## 6.3 Zusammenfassung

Es wurden erstmalig in dieser Arbeitsgruppe FAD-Messungen mit  $H_2$ -Molekülen an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der  $[100]$ - und  $[110]$ -Richtung mit dem Potential (6.1) simuliert und mit den entsprechenden Messungen verglichen. Eine grobe Anpassung des Potentials in Form der Abschwächung der Dipol-Dipol- bzw. Quadrupol-Dipol-Wechselwirkung zwischen dem Projektil und der Oberfläche um 10% ergab eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Messungen und Simulationen. Somit wurde gezeigt, dass es prinzipiell möglich ist mit diesem Ansatz auch Messungen mit Molekül-Projektilen zu beschreiben. Eine Erweiterung auf andere Systeme sollte leicht zu vollziehen sein.

Dass die Modulation der Intensitäten der Beugungslinien in der Beugungskarte in  $[110]$ -Richtung, wie sie bei atomaren Projektilen beobachtet wird, bei der Verwendung von Molekülen als Projektile verschwindet, konnte auf die Quadrupolwechselwirkung zwischen der Oberfläche und dem Molekül zurückgeführt werden. Durch die Verwendung von unpolarisierten Molekülen, muss über alle möglichen Molekülausrichtungen im Raum summiert werden. Durch die veränderte Potentialform aufgrund der Quadrupolwechselwirkung, kompensieren sich die Intensitätsmodulationen der einzelnen Ausrichtungen. Die gemittelte Beugungskarte weist dann keinerlei Intensitätsmodulationen der Beugungsreflexe mit der senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge mehr auf, was in guter Übereinstimmung mit dem Experiment steht.





## 7 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden die Oberflächen von Oxidkristallen mittels der streifenden Streuung schneller Atome und Moleküle untersucht. Dabei wurden Atome oder Moleküle unter Einfallswinkeln von  $\Phi_{in} \leq 2^\circ$  und Energien von  $E = 200$  eV bis 120 keV entlang niedrig-indizierter Richtungen der Oberfläche gestreut. Durch den flachen Einfallswinkel liegt die Senkrechterenergie in Bereich von  $E_\perp \sim 1$  eV, sodass eine Überwindung des repulsiven Anteils des Wechselwirkungspotentials und somit das Eindringen der Projektile in die Oberfläche verhindert wird. Eine Sensitivität auf die oberste Lage der Oberfläche ist damit sichergestellt.

Die Streuung findet im Regime der axialen Oberflächengitterführung statt, wobei das Wechselwirkungspotential aufgrund der Streugeometrie entlang der Streurichtung gemittelt wird, sodass der Streuprozess zweidimensional beschrieben werden kann. Die Projektile werden entlang von Kreisbögen aus der Streuebene heraus azimuthal abgelenkt. Die gestreuten Projektile werden mittels eines ortsauflösenden Detektors nachgewiesen. Die Intensitätsverteilung besitzt charakteristische Maxima an den maximalen Streuwinkeln (Regenbogenwinkel  $\Theta_{RB}$ ). Für hinreichend kleine Energien können Beugungseffekte beobachtet werden, die auf die Interferenz von Materiewellen zurückzuführen sind. Die Analyse der Intensitätsverteilung erlaubt Rückschlüsse auf das Wechselwirkungspotential und somit letztlich auf die Struktur der Oberfläche.

Die Messungen an der (100)- sowie der (001)-Fläche des Systems  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  konnten gut in der zweidimensionalen Näherung des Streuprozesses beschrieben und analysiert werden. Die Kristalle wurden dabei am *Leibniz Institut für Kristallzüchtung Berlin* mit dem Czochralski-Verfahren gewachsen. In FAD-Messungen sowie der Regenbogenstreuung wurde die Oberflächenterminierung der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(100)$ -Fläche untersucht. Es konnten durch die Präparation atomar nahezu glatte Oberflächen erzeugt werden. Die Beugungsdaten entlang verschiedener Richtungen wurden zunächst für die Bestimmung der Gitterparameter genutzt. Diese ließen sich mit hoher Präzision bestimmen und stehen im Einklang mit der Literatur. Aus den gewonnenen Messdaten wurden anschließend Beugungskarten erzeugt. Für die zwei in der Literatur besprochenen Oberflächenterminierungen *A* und *B* wurden für einen Vergleich mit dem Experiment entsprechende Beugungskarten simuliert. Es konnte gezeigt werden, dass die *A*-Terminierung das Experiment nur ungenügend reproduzieren kann. Die *B*-Terminierung hingegen lieferte eine ähnliche Beugungskarte, wie sie gemessen wurde. Eine Verwendung der in der Literatur angegebenen Relaxationen der Oberfläche brachte keine Verbesserungen. So wurden alternative Relaxationen abgeleitet, die letztlich zu dem in dieser Arbeit vorgestellten Strukturmodell  $B^*$ -führten. Sowohl die FAD-Messungen, als auch die Regenbogenstreuung konnte hervorragend durch Simulationen der Streuverteilungen auf Basis der  $B^*$ -Terminierung beschrieben werden. Der mögliche Anteil einer co-existierenden *A*-Terminierung konnte zu  $< 10\%$  bestimmt werden.

Nach derzeitigem Kenntnisstand wurden erste gezielte experimentelle Untersuchun-

gen der Struktur der  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(001)$ -Fläche durchgeführt. Aufgrund der bevorzugten Spaltung entlang der (100)-Fläche, konnten nur mit Stufen-Kanten durchsetzte Oberflächen erzeugt werden. Dennoch war es möglich Streuverteilungen entlang verschiedener Richtungen aufzunehmen. Die aus den FAD-Messungen ermittelten Gitterparameter zeigen dabei eine sehr gute Übereinstimmung mit der Literatur.

Durch die Messungen an der (100)- sowie der (001)-Fläche konnte ein vollständiger Satz an Gitterparametern für das System  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  bestimmt werden. Diese stimmen selbst bei Ausheiltemperaturen nahe dem Schmelzpunkt noch erstaunlich gut mit den Parameter des Volumenkristalls überein. Eine Rekonstruktion der Oberfläche kann demnach ausgeschlossen werden.

Der Befund zur Terminierung der (100)-Oberfläche zeigt eine Diskrepanz zu den Messungen von *Lovejoy et al.*, die in ihren Messungen an mit dem FZ-Verfahren gewachsenen Kristallen beide Terminierungen nachweisen konnten. Um diese Diskrepanz aufzuklären, wären FAD-Messungen an mittels des FZ-Verfahrens gewachsenen Kristallen vonnöten. Des Weiteren könnte man den Einfluss der Wachstumsatmosphäre auf die Oberflächenterminierung weiter untersuchen. Insbesondere die Abhängigkeit der Oberflächenstruktur/-terminierung vom Sauerstoffpartialdruck beim Ausheilen und Wachstum ist von Interesse.

Bei FAD-Messungen an der (12x4)-Rekonstruktion der  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Fläche wurden von *Busch et al.* bisher nicht beobachtbare Effekte gefunden. Diese ließen sich in einer dreidimensionalen Theorie beschreiben und auf eine dreidimensionale Streugeometrie zurückführen. Aufgrund einer genügend großen Einheitszelle und einem langwelligen Höhenprofil innerhalb der Einheitszelle, besteht trotz der Mittelung des Wechselwirkungspotentials eine Interferenzbedingung in Streurichtung. Der Abstand zwischen den Laue-Kreisen höherer Ordnung wird dadurch endlich. Bei azimuthaler Verdrehung des Kristalls vergrößert sich die Aufstreuung der Projektile und es verkleinert sich der Abstand der Laue-Kreise zueinander, wodurch diese in den experimentell ausgeleuchteten Bereich des Messspektrums treten. Die Tendenz der vergrößerten Aufstreuung der Projektile steht dabei in Konkurrenz mit dem Übergang von der axialen zur planaren Gitterführung, wodurch dieser Effekt nur für azimuthale Verdrehungen aus der niedrig-indizierten Kristallrichtung von wenigen Grad zu beobachten ist.

Es wurde gezeigt, dass schon bei der Verwendung von  $^4\text{He}$ -Projektilen keine Beugungsreflexe aufzulösen sind. Die Verwendung von leichteren Projektilen ist also notwendig. Für eine effektivere Auswertung der Beugungsspektren wurde zudem ein Programm entwickelt, welches in der Lage ist die Positionen der Beugungsreflexe aus den Messungen zu extrahieren und mittels Regressionen aus ihnen die Gitterparameter zu bestimmen. So war es nicht mehr nötig die Projektionen entlang des Laue-Kreises und auf die Oberflächenebene getrennt auszuwerten. Die ermittelten Gitterparameter zeigten geringe Unsicherheiten und eine hervorragende Übereinstimmung mit den Literaturwerten. Ferner wurde in dieses Programm ein Modell zur Beschreibung der Intensitäten der Beugungsreflexe implementiert. Dieses Modell basiert auf der Harte-Wand-Näherung des Potentials und der Eikonalnäherung des Streuprozesses. Über eine einfache Formel wurde dabei eine Beschreibung der Abhängigkeit der Korrugation von der azimuthalen Verdrehung des Kristalls entwickelt. Die berechneten Intensitäten zeigen eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Intensitätsverteilungen. Die experimentell bestimmten relativen Korrugationen verhalten sich dabei bei azimuthaler Verdrehung nahezu exakt so, wie von dem Modell

---

vorhergesagt.

Sowohl die (1120)-, wie auch die (0001)-Fläche konnten mit einer atomaren Glattheit erzeugt werden. Die Breite der Beugungsreflexe bei den Messungen mit  $H$ -Projektilen hing dann nur noch von der Ausdehnung des Projektilstrahls ab. Als Bestätigung des Auftretens der longitudinalen Kohärenz, wurden Messungen an der  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31}) \arctan\left(\frac{\sqrt{3}}{11}\right)$ -Rekonstruktion der Saphir-(0001)-Fläche durchgeführt. Es konnten Beugungsbilder mit einer ungewöhnliche Anordnung der Beugungsreflexe aufgenommen und ausgewertet werden. Diese Anordnung konnte so erklärt werden, dass die  $\pm 9^\circ$  Verdrehungen der  $\sqrt{31}$ -Rekonstruktion nahezu gleichberechtigt sind. Dadurch sind auf der Oberfläche Domänen mit  $+9^\circ$ - und welche mit  $-9^\circ$ -Verdrehung vorhanden. Die Beugungsbilder entstanden aus einer Überlagerung der Beugungsbilder beider Arten von Domänen. Da sich die Auswertung „per Hand“ bei diesen komplexen Beugungsbildern äußerst mühselig gestaltete, wurde das für die  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ -(1120)-Fläche geschriebene Programm auf die (0001)-Fläche erweitert. Die damit durch Regressionen ermittelten Gitterparameter zeigten eine exzellente Übereinstimmung mit den Literaturwerten. Die Regressionen zeigten jedoch auch, dass schon kleinste Abweichungen in Energie oder azimuthaler Verdrehung aufgrund der Komplexität der Beugungsbilder Abweichungen in den Reflexpositionen aus dem Experiment und Berechnungen erzeugen. Eine optimale Ausrichtung des Kristalls wird somit erschwert.

Die Entdeckung und die erfolgreiche Beschreibung der longitudinalen Kohärenz bei der streifenden Streuung von Atomen wirft die Frage auf, bei welchen Systemen dieser Effekt ebenfalls auftritt. Bisher ist kein weiteres, als das  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ -System bekannt. Die Beschreibung der Intensitäten der Beugungsreflexe fand mit einem sehr einfachen Modell in Harter-Wand- und Eikonalnäherung statt. Die maximale Korrugation wurde dabei als fest angenommen. Obwohl im Winkel-Term der effektiven Korrugation der Einfallswinkel auftaucht, ist die maximale Korrugation selbst auch vom Einfallswinkel bzw. der Senkrechtenenergie abhängig. Eine Erweiterung des Modells ist also notwendig. Dazu könnte man prinzipiell Messungen entlang einer niedrig-indizierten Richtung für verschiedene Einfallswinkel und Energien durchführen und für diese jeweils eine Anpassung der Korrugation vornehmen. Ein unbestimmter Faktor bleibt dabei jedoch der Proportionalitätsfaktor  $\alpha$ . So konnten bisher nur relative Aussagen zur Korrugation getroffen werden. Für absolute Angaben wird das vorgestellte Modell weiter zu verfeinern sein.

Nach wie vor ist die Oberflächenstruktur der (0001)-Fläche ein ungeklärtes Thema. Im Rahmen dieser Arbeit konnten nur einfache Simulationen der Struktur nach *Lauritsen et al.* durchgeführt werden. Es zeigte sich eine Diskrepanz zu den Messungen. Aufgrund der großen Einheitszelle, war eine Anpassung der Struktur schwierig. Zukünftige Arbeiten werden diesen Aspekt weiter vertiefen müssen, indem weitere FAD-Messungen und vor allem Regenbogenmessungen durchgeführt werden. Versuche das Strukturmodell über Symmetrieüberlegungen abzuwandeln und anzupassen, waren im Rahmen dieser Arbeit nicht erfolgreich, stellen aber eine mögliche Herangehensweise an das Problem dar.

FAD-Messungen mit  $H_2$ -Molekülen an der  $KCl(001)$ -Fläche entlang der [100]- und [110]-Richtung mit dem Potential (6.1) wurden erstmalig in dieser Arbeitsgruppe simuliert und mit den entsprechenden Messungen verglichen. Ausgangspunkt war, dass die Beugungskarten entlang beider Richtungen bei der Verwendung von atomaren Projektilen über den gesamten Bereich der senkrecht-de-Broglie Wellenlänge

ausgeprägte Intensitätsmodulationen der Beugungsreflexe zeigten. Bei Messungen mit Molekülen blieb diese Modulation in [100]-Richtung erhalten. In [110]-Richtung waren hingegen keine Intensitätsmodulationen mehr zu beobachten.

Es wurde ein Potential aus den Berechnungen von *Kroes et al.* für die Wechselwirkung von  $H_2$ -Molekülen mit einer  $LiF(001)$ -Oberfläche für die  $KCl(001)$ -Fläche abgeleitet. Die Berechnungen mussten für die Streugeometrie der streifenden Streuung so abgewandelt werden, dass auch die Mittelung des Potentials entlang der Streurichtung berücksichtigt wird. Es ergab sich ein stark von der Ausrichtung des Moleküls beim Streuprozess abhängiges Potential. Die Simulationen der Beugungskarten mit diesem Wechselwirkungspotential zeigte das selbe Ausbleiben der Intensitätsmodulation in [110]-Richtung, wie es im Experiment zu beobachten war. Für eine verbesserte Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment in [100]-Richtung wurden die attraktiven Paar-Potentiale abgeschwächt. So konnten durch die Simulationen mit dem Experiment sehr gut übereinstimmende Beugungskarten erzeugt werden. Dabei ließ sich das Ausbleiben der Modulation in [110]-Richtung durch die Quadrupolwechselwirkung erklären. Die Beugungskarten für einzelne Molekülausrichtungen zeigten weiterhin ausgeprägte Intensitätsmodulationen. Durch die Mittelung über alle möglichen Ausrichtungen des Moleküls beim Streuprozess, kompensieren sich diese Modulationen dann jedoch, sodass die Intensitätsmodulation ausbleibt.

Um diese These zu bestätigen, wären Messungen mit polarisierten Strahlen nötig. Das würde jedoch ebenfalls bedeuten, dass die bisher nicht berücksichtigten Rotationsübergänge in den Simulationen zu betrachten, das Potential also zu erweitern wäre. Aufgrund des enorm hohen Rechenaufwands, war dies im zeitlichen Rahmen dieser Arbeit nicht möglich. Ferner sollte die Schrittweite für die verschiedenen Winkel der Ausrichtung der Moleküle verringert werden. Dies ist jedoch auch nur mit einer erhöhten Rechnerleistung möglich.

Durch die erfolgreiche Ableitung des Wechselwirkungspotentials und die sehr gute Beschreibung des Experimentes durch entsprechende Simulationen, ist es nun prinzipiell möglich weitere Messungen mit Molekülen zu simulieren und mit dem Experiment zu vergleichen.

Die streifende Streuung schneller Atome und Moleküle stellt eine attraktive Methode zur strukturellen Charakterisierung von verschiedensten Systemen dar, die beim Beschuss mit Elektronen beschädigt werden würden. Durch die unterdrückte Anregung und Emission von Elektronen während der Streuung, ist die Methode ebenso attraktiv für Isolatoren oder Halbleiter, deren Untersuchung durch Aufladungseffekte bei anderen, auf Elektronen basierenden Messverfahren erschwert oder unmöglich wird. Eine Modifikation der Oberfläche durch die streifende Streuung konnte bisher nicht nachgewiesen werden. Für darauf empfindliche Systeme, wie zum Beispiel organische Adsorbate, könnte die FAD eine attraktive Untersuchungsmethode darstellen. Dies wurde unter anderem bereits in [14] umgesetzt.

# Literaturverzeichnis

- [1] D. P. WOODRUFF, T. A. DELCHAR: Atomic-scale Surface Structure Determination: Comparison of Techniques. In: *Cambridge University Press* (1994)
- [2] F. SCHÜTH: Heterogene Katalyse: Schlüsseltechnologie der chemischen Industrie. In: *Chemie in unserer Zeit* 40 (2006), S. 92–103
- [3] H.-J. FREUND: Clusters and islands on oxides: from catalysis via electronics and magnetism to optics. In: *Surface Science* 500 (2002), S. 271–299
- [4] G. ERTL: Reactions at Surfaces: From Atoms to Complexity. In: *Angewandte Chemie* 47 (2008)
- [5] D. ROSENTHAL: Functional surfaces in heterogeneous catalysis - a short review. In: *Physica Status Solidi A* 208 (2011), S. 1217–1222
- [6] M. A. VAN HOVE: Atomic-scale Surface Structure Determination: Comparison of Techniques. In: *Surface and Interface Analysis* 28 (1999), S. 36–43
- [7] W. DEMTRÖDER: *Experimentalphysik 3*. 3rd. Springer, 2005
- [8] D. FARIAS, K. H. RIEDER: Atomic beam diffraction from solid surfaces. In: *Reports on Progress in Physics* 61 (1998), S. 1575–1664
- [9] N. BUNDALESKI, P. SOULISSE, A. MOMENI, H. KHEMLICHE, P. RONCIN: Decoherence in fast atom diffraction from surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 269 (2011), S. 1216–1220
- [10] N. TAKAHASHI, Y. ADACHI, M. SAITO, Y. HARUYAMA: Absolute detection efficiencies for keV energy atoms incident on a microchannel plate detector. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 315 (2013), S. 51–54
- [11] B. L. PEKO, T. M. STEPHEN: Absolute detection efficiencies of low energy  $H$ ,  $H^-$ ,  $H^+$ ,  $H_2^+$  and  $H_3^+$  incident on a multichannel plate detector. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 171 (2000), S. 597–604
- [12] E. LIENARD, M. HERBANE, G. BAN, G. DARIUS, P. DELAHAYE, D. DURAND, X. FLECHARD, M. LABALME, F. MAUGER, A. MERY, O. NAVILIAT-CUNCIC, D. RODRIGUEZ: Performance of a micro-channel plates position sensitive detector. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 551 (2005), S. 375–386
- [13] M. HENZLER, W. GÖPEL: *Oberflächenphysik des Festkörpers*. 2nd. BG Teubner Studienbücher, 1994



- [14] J. SEIFERT: *Bestimmung der atomaren Struktur ultradünner Schichten auf Festkörperoberflächen mittels streifender Atomstreuung*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2012
- [15] H. WINTER: Collisions of atoms and ions with surfaces under grazing incidence. In: *Physics Reports* 367 (2002), S. 387–582
- [16] J. R. MANSON, H. KHEMLICHE, P. RONCIN: Theory of grazing incidence diffraction of fast atoms and molecules from surfaces. In: *Physical Review B* 78 (2008), S. 155408
- [17] E. F. GREENE, E. A. MASON: Cutoffs and shadows in classical scattering of atoms from surfaces. In: *Surface Science* 75 (1978), S. 549–560
- [18] U. GERLACH-MEYER, E. HULPKE, H.-D. MEYER: In-plane surface scattering in two and three dimensions. Rainbow structure, energy spectra and the influence of surface temperature. In: *Chemical Physics* 36 (1979), S. 327–344
- [19] J. R. KLEIN, M. W. COLE: Classical Scattering of Atoms by a model surface. In: *Surface Science* 79 (1979), S. 269–288
- [20] K. H. RIEDER, N. GARCIA, V. CELLI: An effective procedure to determine corrugation functions from atomic beam-diffraction intensities. In: *Surface Science* 108 (1981), S. 169–180
- [21] DONALD S. GEMMELL: Channeling and related effects in the motion of charged particles through crystals. In: *Reviews of Modern Physics* 46 (1974), S. 129–227
- [22] H. NIEHUS, W. HEILAND, E. TAGLAUER: Low-energy ion scattering at surfaces. In: *Surface Science Reports* 17 (1993), S. 213–303
- [23] A. SCHÜLLER: *Quanten-Regenbogenstreuung bei axialer Oberflächen-Gitterführung schneller Atome - Fast Atom Diffraction*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2010
- [24] J. A. ADAMS: The mathematical physics of rainbows and glories. In: *Physics Report* 356 (2002), S. 229–365
- [25] C. PINCOCK: Mathematical explanations of the rainbow. In: *Studies in History and Philosophy of Modern Physics* 42 (2011), S. 13–22
- [26] W. F. AVRIN, R. P. MERRILL: Simplified analysis of helium scattering: supernumerary rainbows from a soft, corrugated potential. In: *Surface Science* 311 (1994), S. 296–280
- [27] K. W. FORD, J. A. WHEELER: Semiclassical description of scattering. In: *Annals of Physics* 7 (1959), S. 259–286
- [28] WILLIAM A. STEELE: Calculations Of Atomic Scattering From Surfaces. I. An Analytically Soluble Model For A Rigid Solid. In: *Surface Science* 38 (1973), S. 1–17



- 
- [29] A. SCHÜLLER, S. WETHEKAM, H. WINTER: Diffraction of Fast Atomic Projectiles during Grazing Scattering from a LiF(001). In: *Physical Review Letters* 98 (2007), S. 016103
- [30] P. ROUSSEAU, H. KHEMLICHE, A. G. BORISOV, P. RONCIN: Quantum Scattering of Fast Atoms and Molecules on Surfaces. In: *Physical Review Letters* 98 (2007), S. 016104
- [31] J. SEIFERT, H. WINTER: Young-Type Interference for Scattering of Fast Helium Atoms from an Oxygen Covered Mo(112) Surface. In: *Physical Review Letters* 108 (2012), S. 065503
- [32] N. BUNDALESKI, H. KHEMLICHE, P. SOULISSE, P. RONCIN: Grazing Incidence Diffraction of keV Helium Atoms on a Ag(110) Surface. In: *Physical Review Letters* 101 (2008), S. 177601
- [33] M. BUSCH, A. SCHÜLLER, S. WETHEKAM, H. WINTER: Fast atom diffraction at metal surface. In: *Surface Science* 603 (2008), S. L23–L26
- [34] H. KHEMLICHE, N. BUNDALESKI, P. SOULISSE, P. RONCIN: Electron excitations in grazing diffraction of fast He on a Ag(110) surface. A tribute to Hannspeter Winter. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 267 (2009), S. 620
- [35] M. BUSCH, E. MEYER, K. IRMSCHER, Z. GALAZKA, K. GÄRTNER, H. WINTER: Fast Atom Diffraction from a  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(100) surface. In: *Applied Physics Letters* 105 (2014), S. 051603
- [36] H. KHEMLICHE, P. ROUSSEAU, P. RONCIN, V. H. ETGENS, F. FINOCCHI: Grazing incidence fast atom diffraction: An innovative approach to surface structure analysis. In: *Applied Physics Letters* 95 (2009), S. 151901
- [37] U. SPECHT: *Untersuchung quantenmechanischer Effekte bei der streifenden Streuung schneller Atome an einer KCl(001)-Oberfläche*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diplomarbeit, 2007
- [38] A. SCHÜLLER, H. WINTER: Interaction potentials for Na, Al and Ar atoms from rainbow scattering under axial surface channeling from Al(111) and Al(001) surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 256 (2007), S. 122–125
- [39] A. SCHÜLLER, H. WINTER: Supernumerary Rainbows in the Angular Distribution of Scattered Projectiles for Grazing Collisions of Fast Atoms with a LiF(001) Surface. In: *Physical Review Letters* 100 (2008), S. 097602
- [40] U. SPECHT, M. BUSCH, J. SEIFERT, H. WINTER, K. GÄRTNER, R. WLODARCZYK, M. SIERKA, J. SAUER: Classical and quantum mechanical rainbows scattering of fast He atoms from a KCl(001) surface. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 269 (2011), S. 799–803
- [41] M. BUSCH, J. SEIFERT, E. MEYER, H. WINTER: Diffraction of fast H atoms during grazing scattering from an Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1120) surface. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 317 (2013), S. 90–95

- [42] A. SCHÜLLER, D. BLAUTH, J. SEIFERT, M. BUSCH, H. WINTER, K. GÄRTNER, R. WLODARCZYK, J. SAUER, M. SIERKA: Fast atom diffraction during grazing scattering from a MgO(001) surface. In: *Surface Science* 606 (2012), S. 161–173
- [43] P. ROUSSEAU, H. KHEMLICHE, N. BUNDALESKI, P. SOULISSE, A. MOMEINI, P. ROCIN: Surface analysis with grazing incidence fast atom diffraction (GIFAD). In: *Journal of Physics: Conference Series* 133 (2008), S. 012013
- [44] E. MEYER: *Strukturuntersuchungen von dünnen Oxidfilmen auf Metallsubstraten*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diplomarbeit, 2011
- [45] H. GRUNDMANN: *Streifende Streuung schneller Atome und Moleküle an sauberen und adsorbatbedeckten Nickel-Oberflächen*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diplomarbeit, 2009
- [46] A. SCHÜLLER, M. BUSCH, S. WETHEKAM, H. WINTER: Fast Atom Diffraction from Superstructures on a Fe(110) Surface. In: *Physical Review Letters* 102 (2009), S. 017602
- [47] A. SCHÜLLER, M. BUSCH, J. SEIFERT, S. WETHEKAM, H. WINTER, K. GÄRTNER: Superstructures of oxygen and sulphur on a Fe(110) surface via fast atom diffraction. In: *Physical Review B* 79 (2009), S. 235425
- [48] J. SEIFERT, A. SCHÜLLER, H. WINTER, R. WLODARCZYK, J. SAUER, M. SIERKA: Diffraction of fast atoms during grazing scattering from the surface of an ultrathin silica film on Mo(112). In: *Physical Review B* 82 (2010), S. 035436
- [49] J. SEIFERT, M. BUSCH, A. SCHÜLLER, D. BLAUTH, S. WETHEKAM, H. WINTER: Structure of ultrathin silica films on Mo(112) studied via Classical and Quantum Mechanical Rainbow Scattering of Fast Atoms. In: *Surface Interface Analysis* 42 (2010), S. 1575
- [50] H. WINTER, J. SEIFERT, D. BLAUTH, M. BUSCH, A. SCHÜLLER, S. WETHEKAM: Structure of ultrathin oxide layers on metal surfaces from grazing scattering of fast atoms. In: *Applied Surface Science* 256 (2009), S. 365
- [51] I. G. DA PAZ, M. C. NEMES, J. G. PEIXOTO DE FARIA: Gouy phase and matter waves. In: *Journal of Physics: Conference Series* 84 (2007), S. 012016
- [52] S. FENG, H. G. WINFUL: Physical origin of the Gouy phase shift. In: *Optics Letters* 26 (2001), S. 485
- [53] P. HARIHARAN, P. A. ROBINSON: The gouy phase shift as a geometrical quantum effect. In: *Journal of Modern Optics* 43 (1996), S. 219–221
- [54] C. JÖNSSON, D. BRANDT, S. HIRSCHI: Electron Diffraction at Multiple Slits. In: *AJP* 42 (1973), S. 4–11
- [55] W. NOLTING: *Grundkurs Theoretische Physik 5/1*. 6th. Springer, 2003
- [56] U. GARIBALDI, A. C. LEVI, R. SPADACINI, G. E. TOMMEI: Quantum theory of atom-surface scattering: Diffraction and rainbow. In: *Surface Science* 48 (1975), S. 649–675

- 
- [57] T. YOUNG: The Bakerian Lecture: Experiments and Calculations Relative to Physical Optics. In: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 94 (1804), S. 1–16
- [58] G. MOLIERE: Theorie der Streuung schneller geladener Teilchen I: Einzelstreuung am abgeschirmten Coulomb-Feld. In: *Zeitschrift für Naturforschung* 2a (1947), S. 133–145
- [59] J. F. ZIEGLER, J. P. BIRSACK, U. LITTMARK: The Stopping and Range of Ions in Solids. In: *Pergamon Press* 1 (1985)
- [60] D. J. O’CONNOR J. P. BIRSACK: Comparison of theoretical and empirical interatomic potentials. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 15 (1986), S. 14–19
- [61] O. B. FIRSOV: Calculation of the interaction potential of atoms. In: *JETP* 7 (1958), S. 308
- [62] J. SEIFERT, A. SCHÜLLER, H. WINTER, K. GÄRTNER: Transition from axial to planar surface channeling for fast atom diffraction. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 269 (2011), S. 1212–1215
- [63] A. V. KAZAKOV, V. S. MALYSHEVSKII: The effect of surfcae channeling of neutral atoms. In: *Journal of Surface Investigation, X-Ray, Synchrotron and Neutron Techniques* 5 (2011), S. 730–733
- [64] J. SEIFERT, H. WINTER: Structure of monolayer silica on Mo(112) investigated by rainbow scattering under axial surface channeling. In: *Surface Science* 603 (2009), S. L109–L112
- [65] A. SCHÜLLER, S. WETHEKAM, A. MERTENS, K. MAASS, H. WINTER, K. GÄRTNER: Interatomic potentials from rainbow scattering of keV noble gas atoms under axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 230 (2005), S. 172–177
- [66] H. WINTER, A. SCHÜLLER: Rainbow scattering under axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 232 (2005), S. 165–172
- [67] A. SCHÜLLER, H. WINTER: Interatomic potentials between noble gas and Ag atoms from axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 261 (2007), S. 578–581
- [68] K. GÄRTNER, K. HEHL: Theoretical Description of Elastic Atom-Atom Scattering. In: *Physica Status Solidi B* 94 (1979), S. 231
- [69] P. T. WEDEPOHL: Influence of electron distribution on atomic interaction potentials. In: *Proceedings of the Physical Society* 92 (1967), S. 79–93
- [70] R. G. GORDON, Y. S. KIM: Theory for the Forces between ClosedShell Atoms and Molecules. In: *The Journal of Chemical Physics* 56 (1972), S. 3122–3133

- [71] Y. S. KIM, R. G. GORDON: Ionrare gas interactions on the repulsive part of the potential curve. In: *The Journal of Chemical Physics* 60 (1974), S. 4323
- [72] E. CLEMENTI, C. ROETTI: Roothan-Hartree-Fock Atomic Wavefunctions. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 14 (1974), S. 177–478
- [73] E. D. JEMMIS, K. T. GIJU, J. LESZCZYNSKI: Ionic to covalent bonding: a density functional theory study of linear and bent  $X_2Y_3$  monomers ( $X = B, Al, Ga, In$ ;  $Y = O, S, Se$ ). In: *Electronic Journal of Theoretical Chemistry* 2 (1997), S. 130–138
- [74] S. WETHEKAM, H. WINTER: Effect of thermal vibrations and their correlations on grazing scattering of atoms from crystal surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 258 (2007), S. 48–51
- [75] J. LIENEMANN, A. SCHÜLLER, D. BLAETH, J. SEIFERT, S. WETHEKAM, M. BUSCH, K. MAASS, H. WINTER: Coherence during Scattering of Fast H Atoms from a LiF(001) Surface. In: *Physical Review Letters* 106 (2011), S. 067602
- [76] M. BUSCH, J. LIENEMANN, J. SEIFERT, A. SCHÜLLER, H. WINTER: Decoherence in grazing scattering of fast H and He atoms from a LiF(001) surface. In: *Vacuum* 86 (2012), S. 1618–1623
- [77] J. LAPUJOLADE, Y. LEJAY, G. ARMAND: The thermal attenuation of coherent elastic scattering of noble gas from metal surfaces. In: *Surface Science* 95 (1980), S. 107–130
- [78] H. WINTER, A. SCHÜLLER: Fast atom diffraction during grazing scattering from surfaces. In: *Progress in Surface Science* 86 (2011), S. 169–221
- [79] T. ENGEL, K. H. RIEDER: Structural studies of surfaces with atomic and molecular beam diffraction. In: *Springer Tracts in Modern Physics* 91 (1982), S. 55–180
- [80] J. R. MANSON: Atom-surface scattering in the classical limit: Temperature and energy dependence. In: *Physical Review B* 58 (1998), S. 2253–2258
- [81] J. R. MANSON: Inelastic scattering from surfaces. In: *Physical Review B* 43 (1991), S. 6924–6937
- [82] D. M. DANAILOV, D. J. O’CONNOR, K. J. SNOWDON: Simulation of ballistic effects during scattering under glancing angles of incidence from crystal surfaces. In: *Surface Science* 347 (1996), S. 215–227
- [83] D. M. DANAILOV, J.-H. RECHTIEN, K. J. SNOWDON: Scattering of energetic beams at glancing incidence from crystal surfaces: a molecular dynamics simulation. In: *Surface Science* 259 (1991), S. 359–370
- [84] A. MERTENS, H. WINTER: Energy Transfer from Fast Atomic Projectiles to a Crystal Lattice under Channeling Conditions. In: *Physical Review Letters* 85 (2000), S. 2825–2828

- 
- [85] S. E. WETHEKAM: *Ladungsaustausch schneller Edelgasatome und Fullerene mit Festkörperoberflächen*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2009
- [86] T. HECHT: *Effekt der Bandstruktur von Cu(111)- und Cu(110)-Oberflächen auf den resonanten Ladungstransfer bei streifender Streuung*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2000
- [87] P. SORTAIS: Recent progress in making highly charged ion beams. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 98 (1995), S. 508–516
- [88] O. JAGUTZKI, V. MERGEL, K. ULLMANN-PFLEGER, L. SPIELBERGER, U. SPILLMANN, R. DÖRNER, H. SCHMIDT-BÖCKING: A broad-application microchannel-plate detector system for advanced particle or photon detection tasks: large area imaging, precise multi-hit timing information and high detection rate. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 477 (2002), S. 244–249
- [89] J. L. WIZA: Microchannel plate detectors. In: *Nuclear Instruments and Methods* 162 (1979), S. 587–601
- [90] M. MOHAMAD, C. JANOWITZ, I. UNGER, R. MANZKE, Z. GALAZKA, R. UECKER, R. FORNARI, J. R. WEBER, J. B. VARLEY, C. G. VAN DE WALLE: The electronic structure of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *Applied Physics Letters* 97 (2010), S. 211903
- [91] M. ORITA, H. OHTA, M. HIRANO, H. HOSONO: Deep-ultraviolet transparent conductive  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films. In: *Applied Physics Letters* 77 (2000), S. 4166–4168
- [92] C. JANOWITZ, V. SCHERER, M. MOHAMED, A. KRAPF, H. DWELK, R. MANZKE, Z. GALAZKA, R. UECKER, K. IRMSCHER, R. FORNARI, M. MICHLING, D. SCHMEISSER, J. R. WEBER, J. B. VARLEY, C. G. VAN DE WALLE: Experimental electronic structure of In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *New Journal of Physics* 13 (2011), S. 085014
- [93] E. G. VILLORA, K. SHIMAMURA, K. KITAMURA, K. AOKI: Rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *Applied Physics Letters* 88 (2006), S. 031105
- [94] R. K. RAMACHANDRAN, J. DENDOOVEN, J. BOTTERMAN, S. P. SREE, D. POELMAN, J. A. MARTENS, H. POELMAN, C. DETAVERNIER: Plasma enhanced atomic layer deposition of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films. In: *Journal of Materials Chemistry A* 2 (2014), S. 19232
- [95] T. OSHIMA, T. OKUNO, S. FUJITA: Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Film Growth on *c*-Plane Sapphire Substrates by Molecular Beam Epitaxy for Deep-Ultraviolet Photodetectors. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 46 (2007), S. 7217–7220
- [96] T. OSHIMA, N. ARAI, N. SUZUKI, S. OHIRA, S. FUJITA: Surface morphology of homoepitaxial  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films grown by molecular beam epitaxy. In: *Thin Solid Films* 516 (2008), S. 5768–5771



- [97] H. AIDA, K. NISHIGUCHI, H. TAKEDA, N. AOTA, K. SUNAKAWA, Y. YAGUCHI: Growth of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Single Crystals by the Edge-Defined, Film Fed Growth Method. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 47 (2008), S. 8506–8509
- [98] S. Y. ZHANG, H. Z. ZHUANG, C. S. XUE, B. LI, J. SHEN, D. WANG: Growth of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanorods and Photoluminescence Properties. In: *Acta Physica Polonica A* 112 (2007), S. 1195
- [99] Y. LI, T. TOKIZONO, M. LIAO, M. ZHONG, Y. KOIDE, I. YAMADA, J. - J. DELAUNAY: Efficient Assembly of Bridged  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanowires for Solar-Blind Photodetection. In: *Advanced Functional Materials* 20 (2010), S. 1–7
- [100] J. HAO, Z. LOU, I. RENAUD, M. COCIVERA: Electroluminescence of europium-doped gallium oxide thin films. In: *Thin Solid Films* 467 (2004), S. 182–185
- [101] H. MURAKAMI, K. NOMURA, K. GOTO, K. SASAKI, K. KAWARA, Q. T. THIEU, R. TOGASHI, Y. KUMAGAI, M. HIGASHIWAKI, A. KURAMATA, S. YAMAKOSHI, B. MONEMAR, A. KOUKITU: Homoepitaxial growth of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> layers by halide vapor phase epitaxy. In: *Applied Physics Express* 8 (2015), S. 015503
- [102] S. OHIRA, N. ARAI, T. OSHIMA, S. FUJITA: Atomically controlled surfaces with step and terrace of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystal substrates for thin film growth. In: *Applied Surface Science* 254 (2008), S. 7838–7842
- [103] E. G. VILLORA, K. SHIMAMURA, K. AOKI, N. ICHINOSE: Reconstruction of the  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (100) cleavage surface to hexagonal GaN after NH<sub>3</sub> nitridation. In: *Journal of Crystal Growth* 270 (2004), S. 462–468
- [104] Y. J. PARK, C. S. OH, T. H. YEOM, Y. M. YU: Ammonolysis of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and its application to the sublimation source for the growth of GaN film. In: *Journal of Crystal Growth* 264 (2004), S. 1–6
- [105] H. J. LEE, T. I. SHIN, D. H. YOON: Influence of NH<sub>3</sub> gas for GaN epilayer on  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrate by nitridation. In: *Surface and Coatings Technology* 202 (2008), S. 5497–5500
- [106] M. OGITA, S. YUASA, K. KOBAYASHI, Y. YAMADA, Y. NAKANISHI, Y. HATANAKA: Presumption and improvement for gallium oxide thin film of high temperature oxygen sensors. In: *Applied Surface Science* 212-213 (2003), S. 397–401
- [107] M. FLEISCHER, H. MEIXNER: Gallium oxide thin films: A new material for high-temperature oxygen sensors. In: *Sensors and Actuators B: Chemical* 4 (1991), S. 437–441
- [108] X. SUN, Y. LIU, H. GAO, P. - X. GAO, Y. LEI: Bimodular high temperature planar oxygen gas sensors. In: *Frontiers in Chemistry* 2 (2014), S. 57
- [109] M. BARTIC, C. - I. BABAN, H. SUZUKI, M. OGITA, M. ISAI:  $\beta$ -Gallium Oxide as Oxygen Gas Sensors at a High Temperature. In: *Journal of the American Ceramic Society* 90 (2007), S. 2879–2884



- 
- [110] Y. TOMM, P. REICHE, D. KLIMM, T. FUKUDA: Czochralski grown  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  crystals. In: *Journal of Crystal Growth* 220 (2000), S. 510–514
- [111] E. G. VILLORA, K. SHIMAMURA, Y. YOSHIKAWA, K. AOKI, N. ICHINOSE: Large-size  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  single crystals and wafers. In: *Journal of Crystal Growth* 270 (2004), S. 420–426
- [112] J. ZHANG, B. LI, C. XIA, G. PEI, Q. DENG, Z. YANG, W. XU, H. SHI, F. WU, Y. WU, J. XU: Growth and spectral characterization of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  single crystals. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 67 (2006), S. 2448–2451
- [113] E. G. VILLORA, T. ATOU, T. SEKIGUCHI, T. SUGAWARA, M. KIKUCHI, T. FUKUDA: Cathodoluminescence of undoped  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  single crystals. In: *Solid State Communications* 120 (2001), S. 455–458
- [114] M. FLEISCHER, J. GIBER, H. MEIXNER:  $\text{H}_2$ -Induced Changes in Electrical Conductance of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  Thin-Film Systems. In: *Applied Physics A* 54 (1992), S. 560–566
- [115] M. YAMAGA, E. G. VILLORA, K. SHIMAMURA, N. ICHINOSE, M. HONDA: Donor structure and electric transport mechanism in  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ . In: *Physical Review B* 68 (2003), S. 155207
- [116] Z. HAJNAL, J. MIRO, G. KISS, F. RETI, P. DEAK, R. C. HERNDON, J. M. KUPERBERG: Role of oxygen vacancy defect states in the  $n$ -type conduction of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ . In: *Journal of Applied Physics* 86 (1999), S. 3792–3796
- [117] M. R. LORENZ, J. F. WOODS, R. J. GAMBINO: Some Electrical Properties of the Semiconductor  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ . In: *Journal of Chemistry on Solids* 28 (1967), S. 403–404
- [118] N. UEDA, H. HOSONO, R. WASEDA, H. KAWAZOE: Synthesis and control of conductivity of ultraviolet transmitting  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  single crystals. In: *Applied Physics Letters* 70 (1997), S. 3561–3564
- [119] T. HARTWIG, J. SCHOONMAN: Electrical Properties of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  Single Crystals. II. In: *Journal of Solid State Chemistry* 23 (1978), S. 205–211
- [120] T. HARWIG, G. J. WUBS, G. J. DIRKSEN: Electrical Properties of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  Single Crystals. In: *Solid States Communications* 18 (1976), S. 1223–1225
- [121] T. HARWIG, F. KELLENDONK: Some Observations on the Photoluminescence of Doped  $\beta$ -Galliumsesquioxide. In: *Journal of Solid State Chemistry* 24 (1978), S. 255–263
- [122] Y. TOMM, J. M. KO, A. YOSHIKAWA, T. FUKUDA: Floating zone growth of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ : a new window material for optoelectronic device applications. In: *Solar Energy Materials and Solar Cells* 66 (2001), S. 369–374
- [123] K. MATSUZAKI, H. HIRAMATSU, K. NOMURA, H. YANAGI, T. KAMIYA, M. HIRANO, H. HOSONO: Growth, structure and carrier transport properties of  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  epitaxial film examined for transparent field-effect transistor. In: *Thin Solid Films* 496 (2006), S. 37–41

- [124] M. PASSLACK, E. F. SCHUBERT, W. S. HOBSON, M. HONG, N. MORIYA, S. N. G. CHU, K. KONSTADINIDIS, J. P. MANNAERTS, M. L. SCHNOES, G. J. ZYDZIK: Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films for electronic and optoelectronic applications. In: *Journal of Applied Physics* 77 (1995), S. 686
- [125] T. C. LOVEJOY, E. N. YITAMBEN, N. SHAMIR, J. MORALES, E. G. VILLO-RA, K. SHIMAMURA, S. ZHENG, F. S. OHUCHI, M. A. OLMSTEAD: Surface morphology and electronic structure of bulk single crystal  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(100). In: *Applied Physics Letters* 94 (2009), S. 081906
- [126] S. GELLER: Crystal Structure of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *The Journal of Chemical Physics* 33 (1960), S. 676
- [127] M. ZINKEVICH, F. ALDINGER: Thermodynamic Assessment of the Gallium-Oxygen System. In: *Journal of the American Ceramic Society* 87 (2004), S. 683–691
- [128] M. EUMANN, G. SCHMITZ, R. FRANCHY: Long rectangular islands of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> on CoGa(001) - studied by electron energy loss spectroscopy and scanning tunneling microscopy. In: *Applied Physics Letters* 72 (1998), S. 3440
- [129] P. MARIE, X. PORTIER, J. CARDIN: Growth and characterization of gallium oxide thin films by radiofrequency magnetron sputtering. In: *Physica Status Solidi A* 205 (2008), S. 1943–1946
- [130] F. K. SHAN, G. X. LIU, W. J. LEE, G. H. LEE, I. S. KIM, B. C. SHIN: Structural, electrical, and optical properties of transparent gallium oxide thin films grown by plasma-enhanced atomic layer deposition. In: *Journal of Applied Physics* 98 (2005), S. 023504
- [131] A. PAJACZKOWSKA, H. JUSKOWIAK: On the Chemical Transport of Gallium Oxide in the Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/N-H-Cl System. In: *Journal of Crystal Growth* 79 (1986), S. 421–426
- [132] D. H. KIM, S. H. YOO, T.-M. CHUNG, K.-S. AN, H.-S. YOO, Y. KIM: Chemical Vapor Deposition of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Films on Si Substrates. In: *Bulletin of the Korean Chemical Society* 23 (2002), S. 225–228
- [133] H. W. KIM, N. H. KIM: Annealing effects on the properties of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films grown on sapphire by the metal organic chemical vapor deposition. In: *Applied Surface Science* 230 (2004), S. 301–306
- [134] H. W. KIM, N. H. KIM: Growth of gallium oxide thin films on silicon by the metal organic chemical vapor deposition method. In: *Materials Science and Engineering B* 110 (2004), S. 34–37
- [135] L. KONG, J. MA, C. LUAN, W. MI, Y. LV: Structural and optical properties of heteroepitaxial beta Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films grown on MgO(100) substrates. In: *Thin Solid Films* 520 (2012), S. 4270–4274
- [136] G. WAGNER, M. BALDINI, D. GOGOVA, M. SCHMIDBAUER, R. SCHEWSKI, M. ALBRECHT, Z. GALAZKA, D. KLIMM, R. FORNARI: Homoepitaxial growth of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> layers by metal-organic vapor phase epitaxy. In: *Physica Status Solidi A* 211 (2014), S. 27–33

- 
- [137] M.-Y. TSAI, O. BIERWAGEN, M. E. WHITE, J. S. SPECK:  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> growth by plasma-assisted molecular beam epitaxy. In: *Journal of Vacuum Science and Technology A* 28 (2010), S. 354
- [138] R. FRANCHY: Growth of thin, crystalline oxide, nitride and oxynitride films on metal and metal alloy surfaces. In: *Surface Science Reports* 38 (2000), S. 195–294
- [139] G. SCHMITZ, P. GASSMANN, R. FRANCHY: A combined scanning tunneling microscopy and electron energy loss spectroscopy study on the formation of thin, well-ordered  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films on CoGa(001). In: *Journal of Applied Physics* 83 (1998), S. 2533
- [140] A. B. CHASE: Growth of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by the Verneuil Technique. In: *Journal of the American Ceramic Society* 47 (1964), S. 470
- [141] V. I. VASYLTSIV, Y. I. RYM, Y. M. ZAKHARKO: Optical Absorption and Photoconductivity at the Band Edge of  $\beta$ -Ga<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub>O<sub>3</sub>. In: *Physica Status Solidi B* 195 (1996), S. 653
- [142] Z. GALAZKA, R. UECKER, K. IRMSCHER, M. ALBRECHT, D. KLIMM, M. PIETSCH, M. BRÜTZAM, R. BERTRAM, S. GANSCHOW, R. FORNARI: Czochralski growth and characterization of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystals. In: *Crystal Research and Technology* 45 (2010), S. 1229–1236
- [143] K. SHIMAMURA, E. G. VILLORA: Czochralski-Based Growth and Characteristics of Selected Novel Single Crystals for Optical Applications. In: *Acta Physica Polonica A* 124 (2013), S. 265–273
- [144] V. M. BERMUDEZ: The structure of low-index surfaces of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *Chemical Physics* 323 (2006), S. 193–203
- [145] H. HE, R. ORLANDO, M. A. BLANCO, R. PANDEY: First-principles study of the structural, electronic, and optical properties of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in its monoclinic and hexagonal phases. In: *Physical Review B* 74 (2006), S. 195123
- [146] H. HE, M. A. BLANCO, R. PANDEY: Electronic and thermodynamic properties of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *Applied Physics Letters* 88 (2006), S. 261904
- [147] J. AHMAN, G. SVENSSON UND J. ALBERTSSON: A Reinvestigation of  $\beta$ -Gallium Oxide. In: *Acta Crystallographica C* 52 (1996), S. 1336–1338
- [148] DR. K. IRMSCHER: *pers. Mitteilung*. 2014
- [149] J. TOOFAN, P. R. WATSON: The termination of the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) surface: a LEED crystallography determination. In: *Surface Science* 401 (1998), S. 162–172
- [150] D. W. SUSNITZKY, C. B. CARTER: Surface Morphology of Heat-treated Ceramic Thin Films. In: *Journal of the American Ceramic Society* 75 (1992), S. 2463–2478
- [151] Y. KIM, T. HSU: A reflection electron microscopic (REM) study of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) surfaces. In: *Surface Science* 258 (1991), S. 131–146

- [152] P. R. RIBIC, G. BRATINA: Behavior of the (0001) surface of sapphire upon high-temperature annealing. In: *Surface Science* 601 (2007), S. 44–49
- [153] F. CUCCUREDDU, S. MURPHY, I. V. SHVETS, M. PORCU, H. W. ZANDBERGEN, N. S. SIDOROV, S. I. BOZHKO: Surface morphology of c-plane sapphire ( $\alpha$ -alumina) produced by high temperature anneal. In: *Surface Science* 604 (2010), S. 1294–1299
- [154] A. ISMACH, L. SEGEV, E. WACHTEL, E. JOSELEVICH: Atomic-Step-Templated Formation of Single Wall Carbon Nanotube Patterns. In: *Angewandte Chemie Internationale Edition* 43 (2004), S. 6140–6143
- [155] M. BUSCH, J. SEIFERT, E. MEYER, H. WINTER: Evidence for longitudinal coherence in Fast Atom Diffraction. In: *Physical Review B* 86 (2012), S. 241402(R)
- [156] G. BEITEL, K. MARKERT, J. WIECHERS, J. HRBEK, R. J. BEHM: Characterization of Single-Crystal  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) and (11 $\bar{2}$ 0) Surfaces and Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Model Catalysts by Atomic Force Microscopy. In: *Springer Series in Surface Sciences* 33 (1993), S. 71
- [157] K. VENKATARAMANI, T. N. JENSEN, S. HELVEG, M. REICHLING, F. BENENBACHER, J. V. LAURITSEN: Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0) surface as a template for the ordered growth of Ni and Co nanoclusters. In: *Physical Chemistry Chemical Physics* 14 (2012), S. 2092–2098
- [158] A. SCHÜLLER, H. WINTER, M. S. GRAVIELLE, J. M. PRUNEDA, J. E. MIRAGLIA: He-LiF surface interaction potential from fast atom diffraction. In: *Physical Review A* 80 (2009), S. 062903
- [159] H. WINTER, A. SCHÜLLER, J. SEIFERT, J. LIENEMANN, S. WETHEKAM, M. BUSCH: Fast Atom Diffraction at surfaces. In: *Journal of Physics: Conference Series* 388 (2012), S. 012047
- [160] T. M. FRENCH, G. A. SOMORJAI: Composition and Surface Structure of the (0001) Face of  $\alpha$ -Alumina. In: *Journal of Physical Chemistry* 74 (1970), S. 2489
- [161] R. M. JAEGER, H. KUHLENBECK, H.-J. FREUND, M. WUTTIG, W. HOFFMANN, R. FRANCHY, H. IBACH: Formation of a well-ordered aluminium oxide overlayer by oxidation of NiAl(110). In: *Surface Science* 259 (1991), S. 235–252
- [162] H. KNÖZINGER, P. RATNASAMY: Catalytic Aluminas: Surface Models and Characterization of Surface Sites. In: *Catalysis Reviews: Science and Engineering* 17 (1978), S. 31–70
- [163] T. BECKER, A. BIRKNER, G. WITTE, C. WÖLL: Microstructure of the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0) surface. In: *Physical Review B* 65 (2002), S. 115401
- [164] K. SIMEONOV, D. LEDERMAN: Surface structure of (11 $\bar{2}$ 0) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystals after high temperature annealing. In: *Surface Science* 603 (2009), S. 232–236

- 
- [165] G. GUTEKUNST, J. MAYER, M. RÜHLE: Atomic structure of epitaxial Nb-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> interfaces I. Coherent regions. In: *Philosophical Magazine A* 75 (2006), S. 1329–1355
- [166] T. HSU, Y. KIM: Structure of the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0) surfaces: facets and reconstruction. In: *Surface Science* 258 (1991), S. 119–130
- [167] J. GRABOWSKA, A. MEANEY, K. K. NANDA, J.-P. MOSNIER, M. O. HENTY, J.-R. DUCLERE, E. MCGLYNN: Surface excitonic emission and quenching effects in ZnO nanowire/nanowall systems: Limiting effects on device potential. In: *Physical Review B* 71 (2005), S. 115439
- [168] S. CURIOTTO, D. CHATAIN: Surface morphology and composition of c-, a- and m-sapphire surfaces in O<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> environments. In: *Surface Science* 603 (2009), S. 2688–2697
- [169] M. A. SCHILDBACH, A. V. HAMZA: Sapphire (11 $\bar{2}$ 0) surface: Structure and laser-induced desorption of aluminium. In: *Physical Review B* 45 (1992), S. 6197
- [170] J. AHN, J. W. RABALAIS: Composition and structure of the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)-(1x1) surface. In: *Surface Science* 388 (1997), S. 121–131
- [171] T. SUZUKI, S. HISHITA, K. OYOSHI, R. SOUDA: Structure of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) surface and Ti deposited on  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) substrate; CAICISS and RHEED study. In: *Surface Science* 437 (1999), S. 289–298
- [172] P. D. TEPESCH, A. A. QUONG: First-Principles Calculations of  $\alpha$ -Alumina (0001) Surfaces Energies with and without Hydrogen. In: *Physica Status Solidi B* 217 (2000), S. 377
- [173] R. DI FELICE, J. E. NORTHRUP: Theory of the clean and hydrogenated Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)-(1x1) surfaces. In: *Physical Review B* 60 (1999), S. R16287
- [174] G. RENAUD, B. VILLETTE, I. VILFAN, A. BOURRET: Atomic Structure of the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)-( $\sqrt{31}\times\sqrt{31}$ )R $\pm 9^\circ$  Reconstruction. In: *Physical Review Letters* 73 (1994), S. 1825
- [175] H. TEISSEYRE, P. PERLIN, T. SUSKI, I. GRZEGORY, S. POROWSKI, J. JUN: Temperature dependence of the energy gap in GaN bulk single crystals and epitaxial layer. In: *Journal of Applied Physics* 76 (1994), S. 2429
- [176] J. R. HEFFELFINGER, M. W. BENCH, C. B. CARTER: Steps and the structure of the (0001)  $\alpha$ -alumina surface. In: *Surface Science* 370 (1997), S. L168–L172
- [177] I. STARA, V. NEHASIL, V. MATOLIN: Influence of substrate structure on activity of alumina supported Pd particles: CO adsorption and oxidation. In: *Surface Science* 365 (1996), S. 69–77
- [178] M. GAUTIER, G. RENAUD, L. PHAM VAN, B. VILLETTE, M. POLLAK, N. THROMAT, F. JOLLET, J.-P. DURAUD:  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) Surfaces: Atomic and Electronic Structure. In: *Journal of the American Ceramic Society* 77 (1994), S. 323–334



- [179] J. V. LAURITSEN, M. C. R. JENSEN, K. VENKATARAMANI, B. HINNEMANN, S. HELVEG, B. S. CLAUSEN, F. BESENBACHER: Atomic-Scale Structure and Stability of the  $\sqrt{31}\times\sqrt{31}R9^\circ$  Surface of  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . In: *Physical Review Letters* 103 (2009), S. 076103
- [180] R. MEYER, Q. GE, J. LOCKEMEYER, R. YEATES, M. LEMANSKI, D. REINALDA, M. NEUROCK: An ab initio analysis of adsorption and diffusion of silver atoms on alumina surfaces. In: *Surface Science* 601 (2007), S. 134–145
- [181] B. HINNEMANN, E. A. CARTER: Adsorption of Al, O, Hf, Y, Pt and S Atoms on  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ . In: *Journal of Physical Chemistry C* 111 (2007), S. 7105–7126
- [182] J. F. SANZ, N. C. HERNANDEZ: Mechanism of Cu Deposition on the  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$  Surface. In: *Physical Review Letters* 96 (2005), S. 016104
- [183] S. A. CHAMBERS, T. DROUBAY, D. R. JENNISON, T. R. MATTSSON: Laminar Growth of Ultrathin Metal Films on Metal Oxides: Co on Hydrocylated  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ . In: *Science* 297 (2002), S. 827
- [184] R. DI FELICE, J. E. NORTHRUP: Energetics of AlN thin films on the  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  surface. In: *Applied Physics Letters* 73 (1998), S. 936
- [185] N. YOSHIMOTO, T. MATSUOKA, T. SASAKI, A. KATSUI: Photoluminescence of InGaN films grown at high temperature by metalorganic vapor phase epitaxy. In: *Applied Physics Letters* 59 (1991), S. 2251
- [186] H. TEISSEYRE, T. SUSKI, P. PERLIN, I. GRZEGORY, M. LESZCZYNSKI, M. BOCKOWSKI, S. POROWSKI, J. A. FREITAS JR., R. L. HENRY, A. E. WICKENDEN, D. D. KOLESKE: Different character of the donor-acceptor pair-related 3.27 eV band and blue photoluminescence in Mg-doped GaN. Hydrostatic pressure studies. In: *Physical Review B* 62 (2000), S. 10151
- [187] M. LESZCZYNSKI, P. PRYSTAWKO, R. CZERNECKI, J. LEHNERT, P. PERLIN, P. WISNIEWSKI, CZ. SKIERBISZEWSKI, T. SUSKI, G. NOWAK, F. KAROUTA, J. HOLST, I. GRZEGORY, S. POROWSKI: Epitaxy on GaN bulk crystals. In: *Opto-Electronics Review* 9 (2001), S. 125
- [188] H. MORKOC: III-Nitride semiconductor growth by MBE: Recent issues. In: *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 12 (2001), S. 677–695
- [189] H. TEISSEYRE, M. LESZCZYNSKI, T. SUSKI, I. GRZEGORY, M. BOCKOWSKI, J. JUN, S. POROWSKI, K. PAKULA, J. - L. ROBERT, B. BEUAMONT, P. GIBART, M. VAILLE, J. P. FAURIE: Homoepitaxial layers of gallium nitride grown by metalorganic vapour phase epitaxy. In: *Semiconductor Science and Technology* 12 (1997), S. 240–243
- [190] S. NAKAMURA, M. SENOH, T. MUKAI: High-power InGaN/GaN double-heterostructure violet light emitting diodes. In: *Applied Physics Letters* 62 (1993), S. 2390
- [191] S. NAKAMURA, T. MUKAI, M. SENOH: Candela-class high-brightness InGaN/AlGaN double-heterostructure blue-lightemitting diodes. In: *Applied Physics Letters* 64 (1994), S. 1687



- 
- [192] S. NAKAMURA, T. MUKAI, M. SENOH: High-brightness InGaN/AlGaIn double-heterostructure blue-green-light-emitting diodes. In: *Journal of Applied Physics* 76 (1994), S. 8189
- [193] M. YOSHIMOTO, K. YOSHIDA, H. MARUTA, Y. HISHITANI, H. KOINUMA, S. NISHIO, M. KAKIHANA, T. TACHIBANA: Epitaxial diamond growth on sapphire in an oxidizing environment. In: *Nature* 399 (1999), S. 340
- [194] P. SOUZA SANTOS, H. SOUZA SANTOS, S. P. TOLEDO: Standard Transition Aluminas. Electron Microscopy Studies. In: *Materials Research* 3 (2000), S. 104–114
- [195] M. GAUTIER, J. P. DURAUD, L. PHAM VAN, M. J. GUITTET: Modifications of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) surfaces induced by thermal treatments or ion bombardment. In: *Surface Science* 250 (1991), S. 71–80
- [196] J. WANG, A. HOWARD, R. G. EGDELL, J. B. PETHICA, J. S. FOORD: Arrangement of rotational domains of the ( $\sqrt{31}\times\sqrt{31}$ )R $\pm 9^\circ$  reconstruction of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) revealed by non-contact AFM. In: *Surface Science* 515 (2002), S. 337–343
- [197] J. M. CHARIG: Low-Energy Electron Diffraction Observations of  $\alpha$ -Alumina. In: *Applied Physics Letters* 10 (1967), S. 139
- [198] E. A. A. JARVIS, E. A. CARTER: Metallic Character of the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)-( $\sqrt{31}\times\sqrt{31}$ )R $\pm 9^\circ$  Surface Reconstruction. In: *Journal of Physical Chemistry B* 105 (2001), S. 4045–4052
- [199] M. VERMEERSCH, R. SPORKEN, PH. LAMBIN, R. CAUDANO: The Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> interface formation as studied by electron spectroscopies. In: *Surface Science* 235 (1990), S. 5–14
- [200] C. BARTH, M. REICHLING: Imaging the atomic arrangements on the high-temperature reconstructed  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) surface. In: *Nature* 414 (2001), S. 54
- [201] I. BATYREV, A. ALAVI, M. W. FINNIS: Ab initio calculations on the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) surface. In: *Faraday Discussion - The Royal Society of Chemistry* 114 (1999), S. 33–43
- [202] E. A. SOARES, M. A. VAN HOVE, C. F. WALTERS, K. F. MCCARTY: Structure of the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) surface from low-energy electron diffraction: Al termination and evidence for anomalously large thermal vibrations. In: *Physical Review B* 65 (2002), S. 195405
- [203] C. C. CHANG: LEED Studies of the (0001) Face of  $\alpha$ -Alumina. In: *Journal of Applied Physics* 37 (1968), S. 5570
- [204] J. GUO, D. E. ELLIS, D. J. LAM: Electronic structure and energetics of sapphire (0001) and (11 $\bar{0}$ 2) surfaces. In: *Physical Review B* 45 (1992), S. 13647
- [205] D. BLAUTH: *Streifende Streuung schneller Atome an Oberflächen von Metalloxid-Kristallen und ultradünnen Filmen*, Inst. für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2010

- [206] S. ANSELL, S. KRISHNAN, J. K. R. WEBER, J. J. FELTEN, P. C. NORDINE, M. A. BENO, D. L. PRICE, M.-L. SABOUNGI: Structure of Liquid Aluminium Oxide. In: *Physical Review Letters* 78 (1997), S. 464
- [207] U. SPECHT, M. BUSCH, J. SEIFERT, A. SCHÜLLER, H. WINTER, K. GÄRTNER, R. WŁODARCZYK, M. SIERKA, J. SAUER: Classical and quantum mechanical rainbow-scattering of fast He atoms from a KCl(001) surface. In: *Physical Review B* 84 (2011), S. 125440
- [208] S. WETHEKAM, J. MERCK, M. BUSCH, H. WINTER: Effect of target surface on elastic properties of fast fullerenes. In: *Physical Review B* 83 (2011), S. 085423
- [209] G. J. KROES, R. C. MOWREY: Scattering of H<sub>2</sub> by LiF(001) studied using a new model potential. I. Prediction of large differences in diffraction of cold beams of para-H<sub>2</sub> and normal-H<sub>2</sub>. In: *Journal of Chemical Physics* 103 (1995), S. 2816
- [210] K. T. TANG, J. P. TOENNIES: An improved simple model for the van der Waals potential based on universal damping functions for the dispersion coefficients. In: *Journal of Chemical Physics* 80 (1984), S. 3726
- [211] R. AHLRICHS, H. J. BÖHM, S. BRODE, K. T. TANG, J. P. TOENNIES: Interaction potentials for alkali ion-rare gas and halogen ion-rare gas systems. In: *Journal of Chemical Physics* 88 (1988), S. 6290
- [212] H. J. BÖHM, R. AHLRICHS: A study of short-range repulsion. In: *Journal of Chemical Physics* 77 (1982), S. 2028
- [213] G. VIDALI, G. IHM, H. Y. KIM, M. W. COLE: Potentials of physical adsorption. In: *Surface Science Reports* 12 (1991), S. 133–181
- [214] J. HEPBURN, G. SCOLES, R. PENCO: A simple but reliable method for the prediction of intermolecular potentials. In: *Chemical Physics Letters* 36 (1975), S. 451
- [215] J. P. TOENNIES: On the validity of a modified Buckingham potential for the rare gas dimers at intermediate distances. In: *Chemical Physics Letters* 20 (1973), S. 238
- [216] R. EISENSCHITZ, F. LONDON: Über das Verhältnis der van der Waalsschen Kräfte zu den homöopolaren Bindungskräften. In: *Zeitschrift für Physik* 60 (1930), S. 491–527
- [217] G. STARKSCHALL, R. G. GORDON: Calculation of Coefficients in the Power Series Expansion of the LongRange Dispersion Force between Atoms. In: *Journal of Chemical Physics* 56 (1972), S. 2801
- [218] K. T. TANG: Dynamic Polarizabilities and van der Waals Coefficients. In: *Physical Review* 177 (1969), S. 108
- [219] P. W. FOWLER, J. M. HUTSON: A Semiempirical Model for Atom-Surface Dispersion Coefficients. In: *Surface Science* 165 (1986), S. 289–302

- 
- [220] A. D. BUCKINGHAM, P. W. FOWLER, J. M. HUTSON: Theoretical studies of van der Waals molecules and intermolecular forces. In: *Chemical Review* 88 (1988), S. 963–988
- [221] R. J.-M. PELLENQ, D. NICHOLSON: Intermolecular Potential Function for the Physical Adsorption of Rare Gases in Silicalite. In: *Journal of Physical Chemistry* 98 (1994), S. 13339–13349
- [222] P. W. FOWLER, P. J. KNOWLES, N. C. PYPER: Calculations of two- and three-body dispersion coefficients for ions in crystals. In: *Molecular Physics* 56 (1985), S. 83–95
- [223] P. W. FOWLER, P. A. MADDEN: In-crystal polarizabilities of alkali and halide ions. In: *Physical Review B* 29 (1984), S. 1035–1042
- [224] P. W. LANGHOFF, R. G. GORDON, M. KARPLUS: Comparisons of Dispersion Force Bounding Methods with Applications to Anisotropic Interactions. In: *Journal of Chemical Physics* 55 (1971), S. 2126
- [225] D. M. BISHOP, L. M. CHEUNG: Dynamic dipole polarizability of  $H_2$  and  $HeH^+$ . In: *Journal of Chemical Physics* 72 (1980), S. 5125
- [226] J. HARRIS, P. J. FEIBELMAN: Asymmetrie of the van der Waals Interaction between a Molecule and a Surface. In: *Surface Science* 115 (1982), S. L133–L136
- [227] W. MEYER: Dynamic Multipole Polarizabilities of  $H_2$  and He and Long-Range Interaction Coefficients for  $H_2$ - $H_2$ ,  $H_2$ -He and He-He. In: *Journal of Chemical Physics* 17 (1976), S. 27–33
- [228] N. R. HILL: Quadrupole interaction in the scattering of  $H_2$  from the surface of LiF: Rotational transitions. In: *Physical Review B* 19 (1979), S. 4269
- [229] O. C. HOFER, R. FERREIRA: Covalent and Ionic Bond Orders: Applications to the Alkali Halide Molecules. In: *Journal of Physical Chemistry* 70 (1966), S. 85–90
- [230] A. B. SHUBIN: Calculating Bond Ionicity in Crystals from Thermodynamic Data. In: *Journal of Structural Chemistry* 31 (1990), S. 212–216
- [231] F. TRÄGER: *Streuexperimente mit Wasserstoff- und Heliumstrahlen zur Untersuchung der Wechselwirkung von  $H_2$ ,  $N_2$  und  $C_2H_2$  mit den (001)-Oberflächen von LiF, NaCl, KCl und MgO*, Inst. für Physik, Georg-August-Universität zu Göttingen, Diss., 2010
- [232] I. BEINIK, C. BARTH, M. HANBÜCKEN, L. MASSON: KCl ultra-thin films with polar and non-polar surfaces grown on Si(111)7x7. In: *Scientific Reports* 5 (2014), S. 8223
- [233] H. COKER: Empirical Free-Ion Polarizabilities of the Alkali Metal, Alkaline Earth Metal, and Halide Ions. In: *Journal of Physical Chemistry* 80 (1976), S. 2078

- [234] J. D. POLL, L. WOLNIEWICZ: The quadrupole moment of the H<sub>2</sub> molecule. In: *Journal of Chemical Physics* 68 (1978), S. 3053
- [235] J. R. HEFFELFINGER, M. W. BENCH, C. B. CARTER: On the faceting of ceramic surfaces. In: *Surface Science* 343 (1995), S. L1161–L1166
- [236] L. PHAM VAN, O. KURNOSIKOV, J. COUSTY: Evolution of steps on vicinal (0001) surfaces of  $\alpha$ -alumina. In: *Surface Science* 411 (1998), S. 263–271
- [237] V. E. PUCHIN, J. D. GALE, A. L. SHLUGER, E. A. KONTOMIN, J. GÜNSTER, M. BRAUSE, V. KEMPTER: Atomic and electronic structure of the corundum (0001) surface: comparison with surface spectroscopies. In: *Surface Science* 370 (1997), S. 190–200
- [238] J. R. HEFFELFINGER, C. B. CARTER: Mechanisms of surface faceting and coarsening. In: *Surface Science* 389 (1997), S. 188–200
- [239] C. VERDOZZI, D. R. JENNISON, P. A. SCHULTZ, M. P. SEARS: Sapphire (0001) Surface, Clean and with d-Metal Overlayers. In: *Physical Review Letters* 82 (1999), S. 799
- [240] M.-S. YI, T. S. CHO, H. H. LEE: Initial growth mode of GaN film on stepped sapphire. In: *Solid State Phenomena* 124-126 (2007), S. 61–64
- [241] T. HSU, Y. KIM: Reconstruction of the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0) surfaces. In: *Surface Science Letters* 243 (1991), S. L63–L66
- [242] Z. LODZIANA, J. K. NORSKOV: Interaction of Pd with steps on  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001). In: *Surface Science* 518 (2002), S. L577–L582
- [243] K. C. HASS, W. F. SCHNEIDER, A. CURIONI, W. ANDREONI: The Chemistry of Water on Alumina Surfaces: Reaction Dynamics from First Principles. In: *Journal of Physical Chemistry B* 104 (2000), S. 5527–5540
- [244] Z. LODZIANA, J. K. NORSKOV, P. STOLTZE: The stability of the hydroxylated (0001) surface of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *Journal of Chemical Physics* 118 (2003), S. 11179
- [245] A. HELLMAN, H. GRÖNBECK: Activation of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by a Long-Ranged Chemical Bond Mechanism. In: *Physical Review Letters* 100 (2008), S. 116801
- [246] K. C. HASS, W. F. SCHNEIDER, A. CURIONI, W. ANDREONI: First-Principles Molecular Dynamics Simulations of H<sub>2</sub>= on  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001). In: *Science* 282 (1998), S. 265
- [247] F. AIGNER, N. SIMONOVIC, B. SOLLEDER, L. WIRTZ, J. BURGDÖRFER: Suppression of Decoherence in Fast-Atom Diffraction at Surfaces. In: *Physical Review Letters* 101 (2008), S. 253201

# Publikationsliste

Die folgenden Publikationen des Autors sind in internationalen „peer-reviewed“ Fachzeitschriften erschienen.

1. M. Busch, E. Meyer, K. Irmscher, Z. Galazka, K. GÅrtner, H. Winter  
„Fast Atom Diffraction from a  $\beta$ - $Ga_2O_3$ (100) surface“  
In: *Applied Physics Letter* 105 (2014) 051603
2. J. Seifert, M. Busch, E. Meyer, H. Winter  
„Surface structure of alanine on  $Cu(110)$  via grazing scattering of fast atoms and molecules“  
In: *Physical Review B* 89 (2014) 075404
3. J. Seifert, M. Busch, E. Meyer, H. Winter  
„Surface structure of alanine on  $Cu(110)$  studied by Fast Atom Diffraction“  
In: *Physical Review Letters* 111 (2013) 137601
4. M. Busch, J. Seifert, E. Meyer, H. Winter  
„Diffraction of fast H atoms during grazing scattering from a  $Al_2O_3(11\bar{2}0)$  surface“  
In: *Nuclear Instruments and Methods B* 317 (2013) 90-95
5. M. Busch, J. Seifert, E. Meyer, H. Winter  
„Evidence for longitudinal coherence in Fast Atom Diffraction“  
In: *Physical Reviews B* 86 (2012) 241402(R)
6. J. Seifert, E. Meyer, H. Winter, H. Kuhlenbeck  
„Surface Termination of ultrathin  $V_2O_3$ -films on  $Au(111)$  studied via Ion Beam Triangulation“  
In: *Surface Science Letters* 606 (2012) L41-L44





# Danksagung

Zunächst möchte ich Herrn Prof. Dr. H. Winter meinen Dank aussprechen für die Möglichkeit, diese Arbeit am Lehrstuhl „Physik der Grenzflächen und dünnen Schichten“ anfertigen zu können. Gleichzeitig danke ich Ihm auch für die vielen Gespräche, die neue Ideen für viele der physikalische Fragestellungen brachten und Möglichkeiten aufzeigten, das Experiment oder die Auswertung weiter zu verbessern.

Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn PD Dr. M. Busch für das Einarbeiten in die Messanlage, die Unterstützung bei Experimenten und deren Auswertung, einigen Ideen bei der Interpretation des Experimentes sowie für das Korrekturlesen von Teilen dieser Arbeit.

Ich bedanke mich auch bei Herrn K. Gärtner für das Berechnen der Hartree-Fock-Wechselwirkungspotentiale für die Wechselwirkung von  $He$  mit den Systemen  $\beta$ - $Ga_2O_3$  und  $\alpha$ - $Al_2O_3$ . Herrn Dr. K. Irmischer danke ich, dass er die  $Ga_2O_3$ -Kristalle zur Verfügung stellte und mit einigen Anregungen an der Interpretation der Messdaten beteiligt war.

Ein besondere Dank gilt Herrn Dipl.-Ing. K. Maass und Herrn G. Lindenberg, die stets mit Rat und Tat bei apparativen und elektronischen Problemen, der Umsetzung von Konstruktionsideen oder einfach langen, inspirierenden Gesprächen zur Seite standen. Frau K. Hasse und Frau Dipl.-Ing. B. Gilsenbach danke ich für die administrative Unterstützung über die Jahre dieser Arbeit.

Mein größter Dank gilt meiner Familie, die mich in allen Phasen dieser Arbeit und auch während des gesamten Studiums in jeglicher Form unterstützt haben. Ohne sie wäre der Weg bis zu dieser Arbeit nicht möglich gewesen.



# Selbständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Ich habe mich nicht anderwärts um einen Doktorgrad beworben und besitze keinen entsprechenden Doktorgrad. Ich habe Kenntnis von der dem angestrebten Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung.

Berlin, den 09. Juni 2015

Eric Meyer